

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2001 年 4 月 12 日 (12.04.2001)

PCT

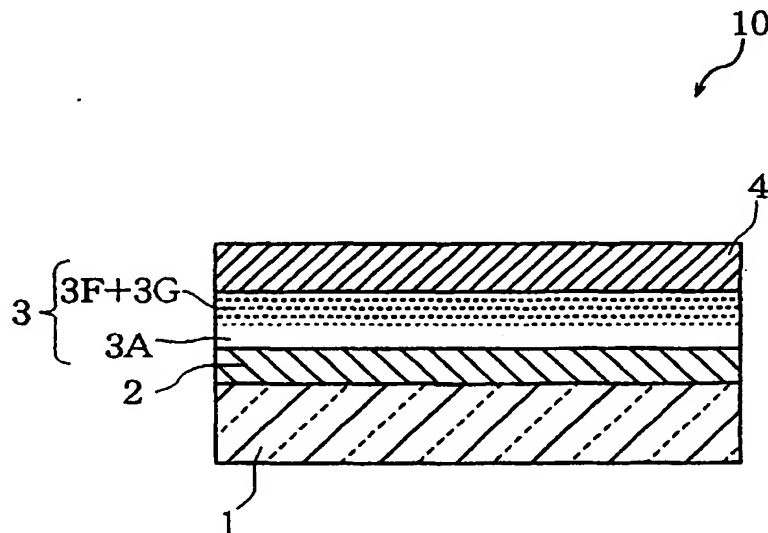
(10) 国際公開番号  
WO 01/26425 A1

- (51) 国際特許分類: H05B 33/14, 33/10, H01L 33/00
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/06971
- (22) 国際出願日: 2000 年 10 月 5 日 (05.10.2000)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願平 11/284360 1999 年 10 月 5 日 (05.10.1999) JP  
特願平 11/299657 1999 年 10 月 21 日 (21.10.1999) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 松下電器産業株式会社 (MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒571-8501 大阪府門真市大字門真 1006 番地 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および  
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 松尾三紀子 (MATSUO, Mikiko) [JP/JP]; 〒631-0013 奈良県奈良市中山町西 1-868-34 Nara (JP). 佐藤徹哉 (SATO, Tetsuya) [JP/JP]; 〒571-0030 大阪府門真市末広町 31-12-203 Osaka (JP). 杉浦久則 (SUGIURA, Hisanori) [JP/JP]; 〒573-0049 大阪府枚方市山之北町 60-1-517 Osaka (JP). 久田 均 (HISADA, Hitoshi) [JP/JP]; 〒565-0085 大阪府豊中市上新田 1-24 G-703 Osaka (JP).
- (74) 代理人: 大前 要 (OHMAE, Kaname); 〒540-0037 大阪府大阪市中央区内平野町 2-3-14 ライオンズビル大手前 2 階 Osaka (JP).
- (81) 指定国 (国内): KR, US.
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

[続葉有]

(54) Title: LUMINESCENT DEVICE AND METHOD FOR MANUFACTURING THE SAME, AND DISPLAY AND ILLUMINATOR COMPRISING THE SAME

(54) 発明の名称: 発光素子とその製造方法、およびそれを用いた表示装置、照明装置



(57) Abstract: An organic luminescent device (10) includes a luminescent area (3) between a positive electrode (2) and a negative electrode (4) on a substrate (1). The luminescent area (3) contains a polymer (3A), luminescent molecules (3G) that is a substance contributing to luminescence, and a charge transportation substance (3F). In the direction of the thickness of the film of the luminescent area (3), the concentrations of the luminescent molecule (3G) and the charge transportation substance (3F) are high near the negative electrode (4), and low near the positive electrode (2). A luminescent substance alone or a luminescent substance and a charge transportation substance both are infiltrated into a polymer or a polymer in which a charge transportation substance is dispersed. High luminescent efficiency is achieved and patterning is easy.

[続葉有]



WO 01/26425 A1



添付公開書類:  
— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

---

(57) 要約:

有機発光素子 10 は、基板 1 上に、陽極 2 と陰極 4 との間に発光領域 3 を積層した構成であり、上記発光領域 3 は、ポリマー 3 A と、発光に寄与する物質である発光分子 3 G と、電荷輸送物質 3 F とを含んでいる。

上記発光領域 3 の膜厚方向において、発光分子 3 G と電荷輸送性物質 3 F は、陰極 4 に近い側では濃度が濃く、陽極 2 に近い側では濃度が薄い。このような有機発光素子は、ポリマーあるいは電荷輸送性物質を分散したポリマーに発光物質あるいは発光物質及び電荷輸送性物質を浸透させることにより構成することができ、高い発光効率を実現すると同時に容易にパターンニングすることができる。

## 明 細 書

発光素子とその製造方法、およびそれを用いた表示装置、照明装置

5

## 技 術 分 野

本発明は、平面光源や平板状ディスプレイ等として使用される発光素子に関する。

10

## 背 景 技 術

電場発光素子は、自発光型のため視認性が高く、表示性能に優れ、高速応答が可能であり、さらには薄型化が可能なため、平板状ディスプレイ等の表示素子として注目を集めている。

中でも、有機化合物を発光体とする有機EL素子は、無機EL素子と比較して低電圧駆動が可能なこと、大面積化が容易なこと、適当な色素を選ぶことにより、所望の発光色を容易に得られること等の特徴を有し、次世代ディスプレイとして活発に開発が行われている。

有機発光体を用いたEL素子としては、例えば厚さ $1\mu\text{m}$ 以下のアントラセン蒸着膜に $30\text{V}$ の電圧を印加することにより、青色発光が得られている(Thin Solid Films, 94(1982) 171)。しかし、この素子は高電圧を印加しても十分な輝度が得られないので、さらに発光効率を向上する必要があった。

これに対し、Tangらは、透明電極(陽極)、ホール輸送層、電子輸送性の発光領域、仕事関数の低い金属を用いた陰極を積層することにより、低電圧化及び発光効率の向上を図り、 $10\text{V}$ 以下の印加電圧で、 $1000\text{cd}/\text{m}^2$ の輝度を実現した(Appl. Phys. Lett. 51(1987) 913)。尚、発光材としてはトリス(8-キノリノラト)アルミニウム錯体(以下、「Alq」)を用いている。Alqは、高

い発光効率と、電子輸送性能を合わせ持つ優れた発光物質である。

さらに、ホール輸送層と電子輸送層とで発光領域を挟み込んだ3層構造の素子 (Jpn. J. Appl. Phys., 27 (1988) L269) や、発光領域にドーピングされた色素 (Alqにクマリン誘導体やDCM1等の蛍光色素) からの発光を得る素子 (J. Appl. Phys., 65 (1989) 3610) が報告されている。上記報告では、色素の適切な選択により発光色が変わることが見い出され、さらに、発光効率も非ドーブに比べ上昇することが明らかにされている。

一方、上記構成の素子の各層の全てを真空蒸着法などのドライプロセスにより形成するのに対し、スピンコート法やキャスト法などの、いわゆる湿式成膜法で素子を形成する方法がある (特開平3-790号公報、特開平3-171590号公報等)。

即ち、上記ホール輸送層、電子輸送層、発光領域を形成する材料の少なくとも1種以上を、ポリマーバインダーとともに適当な溶媒に溶解し、これを電極表面に塗布して発光領域を形成した後、さらに発光領域上に電極を蒸着法等で形成するものである。以下、こうして作製された有機発光素子を従来の積層型発光素子に対してポリマー分散型発光素子という。

ドライプロセスにより作製される有機発光素子と比べて、ポリマー分散型発光素子の有利な点として、以下の点が挙げられる。

(1) 蒸着等のドライプロセスでは成膜が困難な材料も使用可能である。

(2) ドライプロセスでは制御が困難な微量のドーピングも容易に実現できる。

(3) 大面積化が容易である。

(4) 低コストで作製できる。

(5) 複数の発光分子を導入することにより、容易に各発光分子からの発光を同時に得ることができる (白色発光が可能)。

(6) 従来の積層型発光素子は、各層がアモルファス状態である

のに対し、ポリマー分散型発光素子は、各材料がポリマーバインダーに分散されているため熱的に安定である。

従来のポリマー分散型発光素子の発光領域の構成としては、ポリビニルカルバゾールに発光分子としてペリノン誘導体あるいはトリス（８－キノリノラト）アルミニウムを分散したもの、ポリカーボネートに発光分子としてトリス（８－キノリノラト）アルミニウム及びテトラフェニルベンジジンを分散したもの、等がある（特開平 3－790号公報、特開平3－171590号公報等）。

（第1の課題）

10      ポリマー分散型発光素子は、上記した利点がある反面、従来の積層型発光素子に比べて発光効率が低いという課題がある。

即ち、積層型発光素子では、陽極からホール輸送層にホールが注入され、陰極から電子輸送性の発光領域あるいは電子輸送層に電子が注入される。そして、これらのホールと電子が発光領域中で再結合した際、励起子が形成され、この励起子が基底状態に遷移する際に発光する。ここで、電子輸送とホール輸送がそれぞれ機能分離されているため、電子・ホールの再結合は各層の界面近傍でのみ起こる。従って、励起子の生成が効率よく起こり、発光効率も向上する。

さらに、ホール及び電子の注入についても、陽極、陰極との注入障壁が小さくなるように各電極に接する層の材料を選択すれば、注入が容易に行え、低電圧での駆動が可能となる。

これに対して、ポリマー分散型発光素子の場合、主として単層構成のため、上記した積層型発光素子のようなホール・電子の再結合及び励起子の生成が局所的に起こるものではなく、また、電極からのホール・電子の注入障壁も大きいいため、発光効率の向上が困難であった。

このように、発光領域内全体に発光サイトが分散するため、ホールと電子の注入及び輸送のバランスがとりにくく、その結果、再結合確率が低下し、十分な発光効率が得られない。従って、高効率化

の手段としては、ホールと電子の再結合領域をある特定領域に集約することが糸口となる。

前述したとおり、機能分離した層を積層する方法が有効であるが、塗布形成される高分子系においては、上に積層する第2層目の高分子溶液に含まれる溶媒は、成膜した第1層を溶解しない溶媒を選択しなければならない。

また、積層膜の数が多くなるほど溶媒選択及び選択した溶媒に可溶な材料を選択する必要があるが生じる。その結果、材料選択の幅をさらに狭めてしまい、効果的な高効率化を実現できないという課題があった。

(第2の課題)

さらに、ポリマー分散型発光素子の課題として、カラーパネルを製造する際、パターンニング(色の塗り分け)が困難であるという点が挙げられる。即ち、真空蒸着法などのドライプロセスでカラーパネルを製造する場合、基板上に蒸着マスクを設置することにより、所望の位置に各色の素子を形成することができるのに対し、スピンコート法やキャスト法などの湿式成膜法では、基板全面に発光領域を成膜するため、上記のようなパターンニングができない。

これに対して、インクジェット法によるパターンニングが提案されている(例えば、特開平10-12377号公報)。これは、ポリマーを含む発光領域の材料、あるいはポリマーの前駆体をインクジェット法によりノズルから吐出することにより、所望のパターンを形成するものである。

しかしながら、従来のインクジェット方式によるパターンニングでは、塗布するポリマー溶液等の粘度が大きいため、インクヘッドのノズルが詰まってしまい、微細なパターンを形成することが困難であった。

本発明は、上記課題を解決するものであり、ポリマー分散型の有機発光素子においても、高い発光効率を実現すると同時に容易にバ

ターニングができる有機発光素子及びその製造方法を提供するものである。

### 発 明 の 開 示

5 一群の本発明は、上記現状に鑑みなされたものであり、その目的は、高い発光効率を有する発光素子を提供することである。

尚、一群の本発明は、同一乃至類似した着想に基づくものである。しかし、それぞれの発明は異なる実施の形態により具現化されるものであるので、本明細書では、これらの一群の本発明を密接に関連した発明ごとに第1の発明群、第2の発明群として区分する。そして、以下では、それぞれの区分（発明群）ごとにその内容を順次説明する。

#### （第1の発明群）

本願発明者らは、上記目的を達成するため鋭意検討を行った結果、  
15 ポリマード分散型発光素子を製造する際、まず、ポリマード膜を形成した後、これに発光分子、あるいは発光分子と電荷輸送材とを浸透させることにより、高い発光効率を得ると同時に容易にバターンニングが行えることを見出した。

具体的には、請求項1の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を  
20 有する発光素子であって、上記発光領域は、発光に寄与する物質と該物質を含有するための媒体とからなり、上記発光に寄与する物質は、上記発光領域の上記陽極側から上記陰極側に向けて、略連続的に濃度分布をもつ構成であることを特徴としている。

また、請求項2の発明は、請求項1に記載の発光素子であって、  
25 上記発光に寄与する物質は、上記発光領域の上記陽極側または上記陰極側のうちいずれか一方側が他方側よりも高濃度となるような濃度分布を示し、上記一方側から他方側へ連続的に濃度が減少している構成であることを特徴としている。

上記構成とすることにより、発光領域中の発光に寄与する物質が

高濃度である部分で、上記陽極から発光領域に注入されるホールと  
上記陰極から発光領域に注入される電子とが再結合する。このよう  
にして、上記ホールと上記電子との再結合領域を集約することがで  
きるので、電子とホールとの再結合効率が増大し、発光効率を向上  
5 することができる。

尚、上記「発光に寄与する物質」とは、後述する実施の形態に示  
すような、電荷を注入することによって発光する発光分子以外にも、  
例えば、有機バインダーや電荷輸送材料とダイマー、エキサイマー  
あるいはエキサイプレックスを形成することにより、これらからの  
10 発光を得るような物質も含む。ここで、上記ダイマーとは、基底状  
態で上記有機バインダーや電荷輸送材料と結合したものを意味し、  
また、上記エキサイマー、エキサイプレックスとは、電荷が注入さ  
れて励起した状態での上記有機バインダーや電荷輸送材料と反応し  
たものを意味する。

15 また、請求項 3 の発明は、請求項 1 に記載の発光素子であって、  
上記発光領域は、更に、電荷輸送性物質を含むことを特徴としてい  
る。

上記構成とすることにより、上記発光領域の電荷輸送性を更に向  
上でき、電子とホールとの再結合効率が向上する。

20 また、請求項 4 の発明は、請求項 3 に記載の発光素子であって、  
上記電荷輸送性物質は、上記発光領域の上記陽極側から上記陰極側  
に向けて、略連続的に濃度分布をもつ構成であることを特徴として  
いる。

上記構成とすることにより、発光領域内において、陽極側から陰  
25 極側への方向（膜厚方向）において、ホール輸送能の大きい領域と  
電子輸送能の大きい領域が形成されることとなり、電子とホールの  
再結合効率が増大する。

また、請求項 5 の発明は、陽極と陰極との間に電荷輸送領域を有  
する発光素子であって、上記電荷輸送領域は、電荷輸送性物質と該



電荷輸送性物質を含有するための媒体とからなり、上記電荷輸送性物質は、上記電荷輸送領域の上記陰極側から陽極側に向けて、略連続的に濃度分布をもつ構成であることを特徴としている。

5      このような構成とすることによって、発光領域内において、ホール輸送能の大きい領域と電子輸送能の大きい領域が形成されることとなり、電子とホールの再結合効率が増大する。尚、上記構成の場合には、上記電荷輸送領域は発光特性を有し、発光領域の特性を兼ね備えるものである。

10      また、請求項6の発明は、請求項1に記載の発光素子であって、上記発光領域は、上記発光に寄与する物質が存在しない領域を有することを特徴としている。

上記構成とすることにより、発光領域内でキャリア輸送能の異なる領域が形成されるので、電子とホールの再結合効率がさらに増大し、発光効率を向上することができる。

15      また、請求項7の発明は、請求項1に記載の発光素子であって、上記発光領域中の、上記発光に寄与する物質の最大濃度を示す部分は、上記陽極および上記陰極から離れていることを特徴としている。

20      上記構成のように、発光に寄与する物質の最大濃度を示す部分を両電極から離れた構成とするのは、上記発光に寄与する物質が上記陽極または陰極に近接していると、発光に寄与する物質が発光せずに消滅することがあるためである。尚、上記発光に寄与する物質の最大濃度を示す部分は、陽極と陰極との略中間に位置するのがよい。

25      また、請求項8の発明は、請求項5に記載の発光素子であって、上記電荷輸送領域は、上記電荷輸送性物質が存在しない領域を有することを特徴としている。

上記構成とすることにより、電荷輸送性物質の存在している領域と存在しない領域の境界において、陰極から注入される電子と陽極から注入されるホールとの再結合効率がさらに増大し、発光効率を向上することができる。

また、請求項 9 の発明は、請求項 5 に記載の発光素子であって、上記電荷輸送領域中の、上記電荷輸送物質の最大濃度を示す部分は、上記陽極および上記陰極から離れていることを特徴としている。

また、請求項 10 の発明は、照明装置であって、請求項 1 に記載の発光素子を用いたことを特徴としている。

上記構成とすることにより、発光効率の向上した照明装置を提供することができる。

また、請求項 11 の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、上記発光領域は、発光に寄与する物質と該物質を含有するための媒体とよりなり、上記陰極面および上記陽極面に平行な方向において、上記発光に寄与する物質の濃度は、上記発光領域の略中央から周辺へ向けて略連続的に減少することを特徴としている。

また、請求項 12 の発明は、請求項 11 に記載の発光素子であって、前記発光に寄与する物質を、上記陰極面および上記陽極面に平行な方向に、隣接して複数有する構成であり、該複数の発光に寄与する物質の発光色はそれぞれ異なることを特徴としている。

上記構成とすることにより、上記複数の発光に寄与する物質間の境界付近の濃度は小さいので、各発光に寄与する物質が互いに混じり合うようなことはなく、従って、混色が小さい、フルカラー表示性能に優れた発光素子を得ることができる。

また、請求項 13 の発明は、請求項 11 に記載の発光素子であって、上記発光領域は、更に、電荷輸送性物質を含むことを特徴としている。

また、請求項 14 の発明は、請求項 13 に記載の発光素子であって、上記電荷輸送性物質の濃度は、上記陰極面および上記陽極面に平行な方向において、上記発光領域の略中央から周辺へ向けて減少することを特徴としている。

また、請求項 15 の発明は、請求項 11 に記載の発光素子であって

て、上記発光に寄与する物質は、上記発光領域の上記陰極側から上記陽極側に向けて、略連続的に濃度分布をもつ構成であることを特徴としている。

上記構成のように、発光領域内で発光に寄与する物質に濃度分布  
5 を持たせることにより、上記ホールと上記電子との再結合領域を集約することができるので、電子とホールとの再結合効率が増大し、発光効率を向上することができる。

また、請求項 16 の発明は、請求項 14 に記載の発光素子であって、上記電荷輸送性物質は、上記発光領域の上記陰極側から上記陽  
10 極側に向けて、略連続的に濃度分布をもつ構成であることを特徴としている。

上記構成とすることにより、更に、電子とホールとの再結合効率が増大し、発光効率を向上することができる。

また、請求項 17 の発明は、請求項 11 に記載の発光素子であって、上記発光領域は、上記発光に寄与する物質が存在しない領域を  
15 有することを特徴としている。

また、請求項 18 の発明は、請求項 11 に記載の発光素子であって、上記発光に寄与する物質を含有するための媒体が、電荷輸送性能を有することを特徴としている。

また、請求項 19 の発明は、請求項 11 に記載の発光素子であって、上記発光に寄与する物質を含有するための媒体が、有機物からなることを特徴としている。  
20

また、請求項 20 の発明は、請求項 11 に記載の発光素子であって、上記媒体がポリマーからなることを特徴としている。

上記構成のように、上記発光領域を有機物、より具体的にポリマーにより構成することによって、発光効率の向上した有機発光素子を提供することができる。  
25

また、請求項 21 の発明は、表示装置であって、請求項 11 に記載の発光素子を用いたことを特徴としている。

上記構成とすることにより、発光効率の向上した表示装置を提供することができる。

また、請求項 22 の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは陰極上に媒体を配置する配置工程と、上記媒体中に発光に寄与する物質を含有させて発光領域を形成する含有工程と、を有することを特徴としている。

上記方法は、上記媒体を陽極または陰極上に配置する工程と、上記媒体中に発光に寄与する物質を含有させる工程とを有するので、予め発光に寄与する物質を含有させた媒体を、陽極または陰極上に配置することが困難な場合には有効な方法となり得る。

また、請求項 23 の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは陰極上に電荷輸送性物質を含有する媒体を配置する配置工程と、上記媒体中に発光に寄与する物質を含有させて発光領域を形成する含有工程と、を有することを特徴としている。

上記方法のように、上記媒体中に電荷輸送性物質を含有させることにより、電荷の注入及び輸送を効率よく行うことができる発光素子を得ることができる。

また、請求項 24 の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは陰極上に媒体を配置する配置工程と、上記媒体中に発光に寄与する物質及び電荷輸送性物質を含有させる含有工程と、を有することを特徴としている。

また、請求項 25 の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは陰極上に電荷輸送性物質を含有する媒体を配置する配置工程と、上記媒体中に発光に寄与する物質及び電荷輸送性物質を含有させる含有工程と、を有することを特徴としている。

上記配置工程における媒体中に含有されている電荷輸送性物質の電荷と、上記含有工程における電荷輸送性物質の電荷とは、同じで

あっても異なってもよい。

また、請求項 26 の発明は、陽極と陰極との間に電荷輸送領域を有する発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは陰極上に媒体を配置する配置工程と、上記媒体中に電荷輸送性物質を含有させる含有工程と、を有することを特徴としている。

また、請求項 27 の発明は、請求項 23 に記載の発光素子の製造方法であって、上記含有工程において、上記発光に寄与する物質を上記媒体中に浸透させることによって含有させることを特徴としている。

10      また、請求項 28 の発明は、請求項 24 に記載の発光素子の製造方法であって、上記含有工程において、上記発光に寄与する物質および上記電荷輸送性物質を媒体中に浸透させることによって含有させることを特徴としている。

15      上記方法によって、上記発光に寄与する物質、あるいは発光に寄与する物質および電荷輸送性物質を、上記発光領域の上記陽極側から陰極側、あるいは、上記陰極側から陽極側に向けて、略連続的に濃度分布をもたせた発光素子を得ることができる。

20      また、請求項 29 の発明は、請求項 23 に記載の発光素子の製造方法であって、上記含有工程において、上記発光に寄与する物質を溶媒に溶かして得られた溶液を、上記媒体に接触させることにより浸透させることを特徴としている。

25      また、請求項 30 の発明は、請求項 24 に記載の発光素子の製造方法であって、上記含有工程において、上記発光に寄与する物質および上記電荷輸送性物質を溶媒に溶かして得られた溶液を、上記媒体に接触させることにより浸透させることを特徴としている。

上記方法によっても、上記発光に寄与する物質、あるいは発光に寄与する物質および電荷輸送性物質を、上記発光領域の上記陽極側から陰極側、あるいは、上記陰極側から陽極側に向けて、略連続的に濃度分布をもたせた発光素子とすることができる。

また、請求項 3 1 の発明は、請求項 2 7 に記載の発光素子の製造方法であって、上記含有工程において、上記媒体中に発光に寄与する物質をインクジェット法により浸透させることを特徴としている。

上記方法とすることにより、発光に寄与する物質をインクジェット法により媒体中に浸透させるので、媒体の前駆体として粘度の大きいポリマーを用いた場合には、上記ポリマー溶液と発光に寄与する物質とをインクジェット法により塗布する必要はない。従って、インクジェットのノズルが詰まることなく、また、精細なパターンを容易に形成することができる。

10 (第 2 の発明群)

本願発明者らは、従来、有機層全体に拡散していた発光分子をある特定領域に集約すると共に、有機層の表面積を増大させることが高分子系有機発光素子の高効率化につながるという考えに基づき、多孔質化あるいは粗面化された有機層の表面または表面近傍に発光分子を分散させることにより、高輝度発光を実現することができ、上記課題を解決するに至った。

即ち、請求項 3 2 の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、上記発光領域は発光に寄与する物質を含み、上記陽極と上記陰極との間には、上記発光に寄与する物質を特定の領域に集約するための集約化手段を有することを特徴としている。

より具体的には、請求項 3 3 の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、上記発光領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が多孔質化されており、上記発光領域の多孔質化された表面に発光に寄与する物質を有する構成であること

を特徴としている。

また、請求項 3 4 の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、上記発光領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が多孔質化されており、上記発光領域の多孔質化された表面近傍に発光に寄与する物質を有する構成であることを特徴

としている。

上記構成とすることにより、発光に寄与する物質を、ある特定領域、具体的には、多孔質化された発光領域の表面または表面近傍に集約することができ、また、発光に寄与する物質が存在する、ホールと電子との再結合領域の表面積を増大させることとなるので、高輝度発光を実現することが可能となる。

また、請求項 3 5 の発明は、請求項 3 3 に記載の発光素子であって、上記発光領域の多孔質化された表面に電荷輸送性物質を有する構成であることを特徴としている。

10 また、請求項 3 6 の発明は、請求項 3 3 に記載の発光素子であって、上記発光領域の多孔質化された表面に、電荷輸送性物質からなる平坦化層を有する構成であることを特徴としている。

上記構成とすることにより、リーク電流を防止すると共にホールあるいは電子の注入及び輸送を効率よく行うことができる。更には、  
15 上記平坦化層により、近接する陽極または陰極との接合面を平滑に保持することができる。

また、請求項 3 7 の発明は、陽極と陰極との間に電荷輸送領域を有する発光素子であって、上記電荷輸送領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が多孔質化された構成であることを特徴として  
20 している。

このような構成とすることによって、電極（陽極、陰極）から上記電荷輸送領域に注入される電荷の注入効率を向上することができる。尚、上記構成の場合には、上記電荷輸送領域は、発光特性を有する領域であり、発光領域の特性を兼ね備えるものである。

25 また、請求項 3 8 の発明は、請求項 3 7 に記載の発光素子であって、上記電荷輸送領域は、ホール輸送領域であることを特徴としている。

また、請求項 3 9 の発明は、請求項 3 7 に記載の発光素子であって、上記電荷輸送領域は、電子輸送領域であることを特徴としてい

る。

また、請求項 40 の発明は、請求項 33 に記載の発光素子であって、上記発光領域が有機物からなることを特徴としている。

また、請求項 41 の発明は、請求項 33 に記載の発光素子であって、上記発光領域がポリマーからなることを特徴としている。

また、請求項 42 の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、上記発光領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が粗面化されており、上記発光領域の粗面化された表面に発光に寄与する物質を有する構成であることを特徴としている。

また、請求項 43 の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、上記発光領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が粗面化されており、上記発光領域の粗面化された表面近傍に発光に寄与する物質を有する構成であることを特徴としている。

このような構成によっても、発光に寄与する物質が存在する、ホールと電子との再結合領域の表面積を増大させることとなるので、高輝度発光を実現することが可能となる。

また、請求項 44 の発明は、請求項 42 に記載の発光素子であって、上記発光領域の粗面化された表面に、電荷輸送性物質からなる平坦化層を有することを特徴としている。

また、請求項 45 の発明は、陽極と陰極との間に電荷輸送領域を有する発光素子であって、上記電荷輸送領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が粗面化された構成であることを特徴としている。

このような構成とすることによって、電極（陽極、陰極）から上記電荷輸送領域に注入される電荷の注入効率を向上することができる。また、粗面化された電荷輸送領域上に発光領域が配置されている場合には、上記発光領域と上記電荷輸送領域との接触面積が向上



するので、陽極から発光領域に注入されるホールの注入効率が向上する。

また、請求項 4 6 の発明は、請求項 4 5 に記載の発光素子であって、上記電荷輸送領域は、ホール輸送領域であることを特徴とする。

- 5      また、請求項 4 7 の発明は、請求項 4 5 に記載の発光素子であって、上記電荷輸送領域は、電子輸送領域であることを特徴とする。

また、請求項 4 8 の発明は、請求項 4 2 に記載の発光素子であって、上記発光領域が有機物からなることを特徴とする。

- 10      また、請求項 4 9 の発明は、請求項 4 2 に記載の発光素子であって、上記発光領域がポリマーからなることを特徴とする。

また、請求項 5 0 の発明は、表示装置であって、請求項 3 3 に記載の発光素子を用いたことを特徴とする。

また、請求項 5 1 の発明は、照明装置であって、請求項 3 3 に記載の発光素子を用いたことを特徴とする。

- 15      上記構成とすることにより、発光効率の向上した表示装置や照明装置を提供することができる。

- また、請求項 5 2 の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは上記陰極上に、  
20      上記発光領域を構成するための媒体を配置する媒体配置工程と、上記媒体の少なくとも一部を多孔質化する多孔質化工程と、を有することを特徴としている。

- また、請求項 5 3 の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは上記陰極上に媒体を配置する媒体配置工程と、上記媒体の陽極側あるいは陰極側の  
25      うち少なくとも一方を多孔質化する多孔質化工程と、上記媒体の多孔質化された表面に、発光に寄与する物質を配置し、上記媒体と上記発光に寄与する物質とにより発光領域を形成する配置工程と、を有することを特徴としている。

また、請求項 5 4 の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは上記陰極上に媒体を配置する媒体配置工程と、上記媒体の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方を多孔質化する多孔質化工程と、上記媒体の多孔質化された表面近傍に、発光に寄与する物質を含有し、上記媒体と上記発光に寄与する物質とにより発光領域を形成する含有工程と、上記発光領域の多孔質化された表面に電荷輸送性物質を配置する配置工程と、を有することを特徴としている。

上記方法とすることにより、発光に寄与する物質を、多孔質化された発光領域の表面または表面近傍に集約することができる。また、発光に寄与する物質が存在する、ホールと電子との再結合領域の表面積を増大させることができるので、高輝度発光を実現した発光素子を得ることができる。

また、請求項 5 5 の発明は、請求項 5 3 に記載の発光素子の製造方法であって、上記発光領域の多孔質化された表面に、電荷輸送性物質を配置する配置工程を有することを特徴としている。

また、請求項 5 6 の発明は、請求項 5 3 に記載の発光素子の製造方法であって、上記発光領域上に、電荷輸送性物質からなる平坦化層を形成する平坦化層形成工程を有することを特徴としている。

上記方法のように、発光領域の上方に平坦化層を形成することにより、リーク電流を防止すると共にホールあるいは電子の注入及び輸送を効率よく行うことができると共に、近接する陽極または陰極との接合面を平滑に保持することができる発光素子を得ることができる。

また、請求項 5 7 の発明は、請求項 5 3 に記載の発光素子の製造方法であって、上記配置工程は、特定の溶媒に可溶な物質を含有する媒体を配置する工程であり、上記多孔質化工程は、上記溶媒により上記物質を溶出することにより多孔質化を行う工程であることを特徴としている。

また、請求項 58 の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは上記陰極上に媒体を配置する媒体配置工程と、上記媒体の一部を粗面化する粗面化工程と、を有することを特徴としている。

- 5      また、請求項 59 の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは上記陰極上に媒体を配置する媒体配置工程と、上記媒体の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方を粗面化する粗面化工程と、上記媒体の粗表面に、発光に寄与する物質を配置し、上記媒体と上記発光に寄与する
- 10    物質とにより発光領域を形成する配置工程と、を有することを特徴としている。

- また、請求項 60 の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは上記陰極上に媒体を配置する媒体配置工程と、上記媒体の陽極側あるいは陰極側の
- 15    うち少なくとも一方を粗面化する粗面化工程と、上記媒体の粗表面近傍に、発光に寄与する物質を含有させ、上記媒体と上記発光に寄与する物質とにより発光領域を形成する含有工程と、を有することを特徴としている。

- 上記方法とすることにより、上記発光に寄与する物質を、粗面化
- 20    された発光領域の表面または表面近傍に集約することができ、また、発光に寄与する物質が存在する、ホールと電子との再結合領域の表面積を増大させることとなるので、高輝度発光を実現することが可能な発光素子を得ることができる。

- また、請求項 61 の発明は、請求項 59 に記載の発光素子の製造
- 25    方法であって、上記発光領域上に、電荷輸送性物質からなる平坦化層を形成する平坦化層形成工程を有することを特徴としている。

上記方法とすることにより、リーク電流を防止すると共にホールあるいは電子の注入及び輸送を効率よく行うことができると共に、近接する陽極または陰極との接合面を平滑に保持した発光素子を得

ることができる。

また、請求項 6 2 の発明は、請求項 5 9 に記載の発光素子の製造方法であって、上記粗面化工程は、ドライエッチングにより上記発光領域を粗面化する工程であることを特徴としている。

- 5      上記ドライエッチングにより、容易に発光領域の粗面化を行うことができる。

#### 図面の簡単な説明

図 1 は、本発明の実施の形態 1 - 1 に係る有機発光素子の概略断面図である。  
10

図 2 は、本発明の実施の形態 1 - 2 に係る有機発光素子の構成を示す概略図であり、図 2 ( a ) は有機発光素子の概略概念図、図 2 ( b ) は図 2 ( a ) の A - A 線矢視断面図である。

図 3 は、本発明の実施の形態 1 - 2 に係る有機発光素子の製造方法を示す概略断面図である。  
15

図 4 は、本発明の実施の形態 1 - 2 に係る有機発光素子の製造方法の他の例を示す概略断面図である。

図 5 は、本発明の実施の形態 1 - 2 に係る有機発光素子の発光領域の濃度分布について説明するための概略図である。

図 6 は、本発明の実施の形態 1 - 3 に係る有機発光素子の概略断面図である。  
20

図 7 は、本発明の実施の形態 1 - 4 に係る有機発光素子の概略断面図である。

図 8 は、本発明の実施の形態 1 - 5 に係る有機発光素子の概略断面図である。  
25

図 9 は、本発明の実施の形態 1 - 5 に係る有機発光素子の他の例を示す概略断面図である。

図 1 0 は、本発明の実施の形態 1 - 5 に係る有機発光素子の他の例を示す概略断面図である。

図 1 1 は、本発明の実施の形態 1 - 5 に係る有機発光素子のエネルギーダイアグラムである。

図 1 2 は、本発明の実施の形態 1 - 5 に係る有機発光素子のエネルギーダイアグラムである。

5 図 1 3 は、本発明の実施の形態 1 - 5 に係る有機発光素子のエネルギーダイアグラムである。

図 1 4 は、本発明の実施の形態 1 - 5 に係る有機発光素子のエネルギーダイアグラムである。

10 図 1 5 は、本発明の実施の形態 2 - 1 に係る有機発光素子の概略断面図である。

図 1 6 は、本発明の実施の形態 2 - 1 に係る有機発光素子の製造方法を示す概略断面図である。

図 1 7 は、本発明の実施の形態 2 - 1 に係る有機発光素子の変形例を示す概略断面図である。

15 図 1 8 は、本発明の実施の形態 2 - 2 に係る有機発光素子の概略断面図である。

図 1 9 は、本発明の実施の形態 2 - 2 に係る有機発光素子の製造方法を示す概略断面図である。

20 図 2 0 は、本発明の実施の形態 2 - 3 に係る有機発光素子の概略断面図である。

#### 発明を実施するための最良の形態

##### (第 1 の発明群における実施の形態)

以下、本発明の第 1 の発明群について図面に基づいて説明する。

25 尚、以下に示す実施の形態(第 2 の発明群でも同様)では、有機発光素子について説明するが、上記発明の概念は、有機発光素子だけではなく、例えば、有機バインダーに無機発光体を分散させて発光領域を構成する無機発光素子等にも同様に適用することができる。

[実施の形態 1 - 1]

図 1 は、本発明の実施の形態 1 - 1 に係る有機発光素子の概略断面図である。

図 1 に示すように、有機発光素子 10 は、基板 1 上に形成された陽極 2 と、上記陽極 2 に対向配置された陰極 4 と、上記陽極 2 と上記陰極 4 との間に配置された発光領域 3 と、を備えた構成である。

上記発光領域 3 は、ポリマー 3 A と、発光に寄与する物質である発光分子 3 G と、電荷輸送性物質 3 F と、を含んだ構成である。尚、図 1 では、1 種類の発光分子のみについて示している。

また、上記発光分子 3 G 及び電荷輸送性物質 3 F は、発光領域 3 の膜厚（陽極 1 から陰極 4 へ向かう）方向において濃度に分布がある。即ち、発光領域 3 内で、陰極 4 に近い側（図中上側）では発光分子 3 G 及び電荷輸送材 3 F の濃度は濃く、陽極 2 に近い側（図中下側）では濃度が薄い。また、好ましくは、発光領域 3 の膜厚方向において、上記発光分子 3 G 及び電荷輸送性物質 3 F が存在しない領域を有するほうがよい。即ち、発光領域 3 内で、陽極 2 に近い側に、発光分子及び電荷輸送材が存在せず、ポリマー 3 A のみが存在する領域があるほうが好ましい。

尚、上記発光分子 3 G 及び電荷輸送性物質 3 F が膜厚方向において濃度分布があるとしたが、発光領域 3 内で、発光分子 3 G のみが膜厚方向において濃度分布を示し、電荷輸送性物質 3 F は膜厚方向で均一に分布していてもよい。

また、発光領域 3 がポリマー 3 A と発光分子 3 G のみから構成され（電荷輸送性物質 3 F は存在せず）、発光分子 3 G が膜厚方向での濃度に分布を持つ有機発光素子としてもよい。

本発明の有機発光素子の発光機構は、以下の通りである。即ち、図 1 に示した有機発光素子 10 において、陽極 2 に正の、陰極 4 に負の電圧を印加すると、陽極 2 からホールが、陰極 4 から電子が発光領域 3 に注入される。そして、注入されたホールは陰極 4 に、電子は陽極 2 に向かって流れ出す。発光領域 3 中でホールと電子が再

結合し、これに応答して発光領域 3 中の発光分子 3 G から蛍光あるいは燐光が発せられる。

ここで、発光の電流効率（注入された電流に対する発光の効率）を決定する主な因子として、以下の点が挙げられる。

- 5    (1) 注入電流に対するホールと電子の再結合効率
- (2) 再結合に伴う発光分子の励起子生成効率
- (3) 発光分子の励起子からの発光量子効率

上記のうち、(2) と (3) については、ほぼ発光分子そのものの性質で決定されるものである。

- 10    一方、(1) のホールと電子の再結合効率については、ホールと電子のバランスに最も影響を受ける。即ち、ホールと電子のバランスが悪ければ、過剰なキャリアは電極から注入されても発光領域中で再結合せずに反対側の電極まで到達してしまい、発光に寄与しない無駄な電流となる。

- 15    そこで、発光領域中での各キャリアの移動度を上げてやれば、ホールと電子のバランスよく流れ、発光効率も向上する。具体的には、ホールの移動度が  $1 \times 10^{-7} \text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$  以上、電子の移動度が  $5 \times 10^{-5} \text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$  以上であることが好ましい。

- 20    また、上記した発光機構から考えると、発光領域内の膜厚方向において、ホール輸送能の大きい領域と電子輸送能の大きい領域が存在する場合、具体的には発光領域内の陽極側がホール輸送能が大きく、陰極側が電子輸送能が大きい場合、それぞれ陽極と陰極から注入されたホールと電子は上記両領域の界面付近で局所的に再結合する。

- 25    従って、図 1 に示すように、発光分子 3 G 及び電荷輸送性物質 3 F が膜厚方向で濃度分布を持つことにより、好ましくは、発光領域 3 の膜厚方向において、上記発光分子 3 G 及び電荷輸送性物質 3 F が存在しない領域を有することにより、発光領域 3 内でキャリア輸送能の異なる領域が形成されるため、上記 (1) の再結合効率がさ

らに増大し、発光効率も向上する。

[実施の形態 1 - 2]

図 2 は、本発明の実施の形態 1 - 2 に係る有機発光素子の構成を示す概略図であり、図 2 (a) は有機発光素子の概略概念図、図 2 (b) は図 2 (a) の A - A 線矢視断面図である。

図 2 に示すように、有機発光素子 20 は、基板 21 上にストライプ状に形成された陽極 22 と、該陽極 22 上に形成された発光領域 23 と、該発光領域 23 上に上記陽極 22 と直交するようストライプ状に形成された陰極 24 と、を備えた単純マトリックス型の構成である。

上記基板 21 は、本発明の有機発光素子 20 を担持できるものであればよく、ガラスあるいはポリカーボネート、ポリメチルメタクリレート、ポリエチレンテレフタレートなどの樹脂フィルムなどの透明基板、またはシリコンなどの不透明基板を用いることができる。

上記陽極 22 及び上記陰極 24 のうち少なくとも一方は、透明あるいは半透明である必要があり、そのどちらか一方あるいは両方の電極を通して発光領域 23 からの発光を外部に取り出す。

上記陽極 22 としては、通常、インジウムティンオキサイド (ITO)、酸化錫などの透明電極を用いることが多いが、Ni、Au、Pt、Pd などの金属電極を用いてもよい。ITO 膜はその透明性を向上させ、または抵抗率を低下させる目的で、スパッタ、エレクトロンビーム蒸着、イオンプレーティングなどの成膜方法が採用されている。また、膜厚は必要とされるシート抵抗値と可視光透過率から決定されるが、有機発光素子では比較的駆動電流密度が高いため、シート抵抗値を小さくするため 1000 Å 以上の厚さで用いられることが多い。

上記陰極 24 としては、Al、Ag、Au などの金属、MgAg 合金、AlLi 合金などの仕事関数の低い金属と比較的仕事関数が大きく安定な金属の合金、Li/Al、LiF/Al などの仕事関



数の低い金属と仕事関数の高い金属の積層電極などを用いることができる。これら陰極の形成には蒸着法やスパッタ法が好ましい。

尚、陽極 2 2 及び陰極 2 4 は、互いに直交したストライプ状の電極であり、選択された陽極及び陰極に順方向に電圧を印加することにより、両電極の交点の発光領域が印加電圧に応じた輝度で発光する。

また、本実施の形態では、下から基板 2 1 / 陽極 2 2 / 発光領域 2 3 / 陰極 2 4 の順に積層されているが、必ずしもこの順に積層する必要はなく、下から基板 2 1 / 陰極 2 4 / 発光領域 2 3 / 陽極 2 2 の順としてもよい。

また、基板 2 1 側の電極、即ち陽極 2 2 のみが透明で、陰極 2 4 が不透明な場合、発光を外部に取り出すためには基板 2 1 も透明基板である必要がある。

次に、上記発光領域 2 3 について説明する。上記発光領域 2 3 は、ポリマー 2 3 A、発光分子（赤）2 3 R、発光分子（緑）2 3 G、発光分子（青）2 3 B からなる。ポリマー 2 3 A は、発光領域 2 3 の面内方向において連続的に配置されており、発光物質 2 3 R・2 3 G・2 3 B は、上記陰極 2 4 および上記陽極 2 2 に平行な方向に、隣接して複数配置されている。また、上記発光物質 2 3 R・2 3 G・2 3 B の濃度は、それぞれ、上記陰極 2 4 および上記陽極 2 2 に平行な方向において、上記発光領域の略中央から周辺へ向けて略連続的に減少するような分布を有している。

次に、本発明の実施の形態 1 - 2 に係る有機発光素子の製造方法について説明する。図 3 は、本発明の実施の形態 1 - 2 に係る有機発光素子の製造方法を示す概略断面図である。

(1) まず、図 3 (a) に示すように、基板 2 1 上にスパッタ、エレクトロンビーム蒸着、イオンプレーティングなどの成膜法により、ITO 等からなる陽極 2 2 を形成する。

(2) 次に、図 3 (b) に示すように、上記陽極 2 2 を所望のパ

ターン（ここではストライプ状）にパターニングする。例えば、ITO電極の場合、フォトレジストを用いて通常のフォトリソグラフィによりパターニングした後、ヨウ化水素酸等でエッチングを行う。

（３）次に、図３（ｃ）に示すように、上記陽極２２上に、例えば、ポリ－Ｎ－ビニルカルバゾール等からなるポリマー２３Ａを成膜する。成膜は、蒸着法、スパッタ法、塗布法など、いずれの方法を用いてもよいが、主に塗布法により行う。即ち、ポリ－Ｎ－ビニルカルバゾールをトルエンあるいはクロロホルム等の溶媒に溶かした溶液を用いてスピンコート法等により、基板１上に塗布する。上記ポリマー２３Ａの膜厚は特に制限しないが、好ましくは約５００～３０００Å程度がよい。

（４）次に、図３（ｄ）に示すように、上記ポリマー２３Ａを成膜した後、所望の位置に所望の発光色を持つ発光分子を浸透させる。具体的には、ＲＧＢフルカラーパネルを作製する場合、まず赤色の発光分子２３Ｒを溶媒に溶かした溶液を、インクヘッド２７…を用いてインクジェット法により吐出し、ITOからなるストライプ状陽極２２…のうち、赤色用の電極（２本おき）上に滴下し、浸透させる。

（５）次に、図３（ｅ）に示すように、同様に緑色の発光分子２３Ｇの溶液をインクヘッド２７を用いて緑色用のストライプ状陽極２２上に吐出する。

（６）次に、図３（ｆ）に示すように、青色の発光分子２３Ｂの溶液を同様に、青色用の陽極２２上に吐出する。尚、赤、緑、青の発光分子の滴下順に特に制約はなく、どの順番に滴下してもよい。また、発光分子を滴下した後、熱処理を行うことが好ましい。即ち、熱処理することにより、発光分子２３Ｒ・２３Ｇ・２３Ｂの、ポリマー２３Ａへの浸透が促進できる。さらに、ポリマー２３Ａへの浸透を促進するため、発光分子を溶かす溶媒として、ポリマー２３Ａが可溶な液体を用いることが好ましい。

(7) 次に、図3 (g) に示すように、ストライプ状陽極22と直交するように、ストライプ状の陰極24を形成する。成膜は、所望のパターンを形成した蒸着マスクを用いて、蒸着法あるいはスパッタ法等により行う。

- 5      尚、本実施の形態1-2では、ポリマーに発光分子を浸透させるとしたが、ポリマーに発光分子及び電荷輸送性物質を浸透させてもよい。また、電荷輸送性物質を分散したポリマーに発光分子を浸透させてもよい。

10      上記方法により、発光分子23R・23G・23Bをインクジェット法によりポリマー中に浸透させるので、粘度の大きいポリマー溶液をインクジェット法により塗布する必要はなくなる。従って、インクジェットのノズルが詰まることはなく、発光分子を塗布することができ、そして、微細なパターンを形成することが可能となる。

15      次に、上記製造方法により作製された有機発光素子の発光領域の構成について、図5を用いて説明する。図5は、本発明の実施の形態1-2に係る有機発光素子の発光領域の濃度分布について説明するための概略図である。

20      即ち、図5に示すように、発光領域23の面内方向（電極に平行な方向）においては、ストライプ状の陽極22…上にそれぞれ発光分子（赤）23R、発光分子（緑）23G、発光分子（青）23Bが分散されているが、各発光分子23R・23G・23Bの濃度分布は、各陽極22…の略中央上方位置において最大となり、各陽極22の両側に向かうに連れて、各発光分子23R・23G・23Bの濃度は減少する。

25      このような構成であるので、各発光分子23R・23G・23Bのそれぞれの境界付近の濃度は小さいので、各発光分子23R・23G・23Bが混じり合うようなことはなく、混色が小さく、フルカラー表示性能に優れたものである。

さらに、上記ポリマー23A中に、インクジェット27…を用い

てインクジェット法により発光分子 2 3 R・2 3 G・2 3 Bを浸透させているので、上記発光分子 2 3 R・2 3 G・2 3 Bは、発光領域 2 3 の陰極 2 4 側の方が、陽極 2 2 側よりも濃度が高くなる。

よって、上記実施の形態 1 - 1 と同様に、本実施の形態 1 - 2 の  
5 有機発光素子は、電子とホールとの再結合効率が増大し、発光効率が向上する。

図 4 は、本発明の実施の形態 1 - 2 に係る有機発光素子の製造方法の他の例を示す概略断面図である。

図 4 (c) までは、図 3 の場合と同様の工程であり、陽極 2 が形  
10 成された基板 1 上にポリマー 3 A を形成する。

次に、発光分子 3 R・3 G・3 B をポリマー 3 A に以下の方法で浸透させる。

まず、ITO からなるストライプ状陽極 2 のうち、赤色用の電極上のみ開口部を設けたマスク 8 を基板 1 上に設置した後、赤色発光  
15 分子を溶媒に溶かした溶液を用いて、図 4 (d) に示すように蒸気処理を行う。こうして、所望の位置に赤色発光分子 3 R を浸透させる。

続いて、同様の方法で、図 4 (e)、(f) に示すように緑色発光分子 3 G、青色発光分子 3 B を浸透させる。尚、赤、緑、青の発光  
20 分子の蒸気処理の順に特に制約はなく、どの順番に行ってもよい。また、発光分子の蒸気処理後、熱処理を行うことが好ましい。即ち、熱処理により、発光分子 3 B ~ 3 D の、ポリマー 3 A への浸透が促進できる。さらに、ポリマー 3 A への浸透を促進するため、発光分子を溶かす溶媒として、ポリマー 3 A が可溶な液体を用いることが  
25 好ましい。

最後に、図 3 の場合と同様に、ストライプ状陽極 2 と直交するように、ストライプ状の陰極 4 を形成する。

尚、上記ではポリマーに発光分子を浸透させるとしたが、ポリマーに発光分子及び電荷輸送材を浸透させてもよい。また、電荷輸送

材を分散したポリマーに発光分子を浸透させてもよい。

また、本発明に係る有機発光素子の製造方法の別の例は、印刷法により、発光分子をポリマー中に浸透させる方法である。

即ち、図 4 (d) ~ (f) で、発光分子 3 R · 3 G · 3 B を蒸気  
5 処理によりポリマー 3 A に浸透させるのに代えて、発光分子の溶液をオフセット印刷あるいはスクリーン印刷法を用いてポリマー 3 A 上に塗布し、浸透させるものである。

この場合も、上記と同様、発光分子の印刷後に熱処理を行うことが好ましい。さらに、発光分子を溶かす溶媒として、ポリマー 3 A  
10 が可溶な液体を用いることが好ましい。また、ポリマーに発光分子を浸透させる代わりに、ポリマーに発光分子及び電荷輸送材を浸透させてもよく、電荷輸送材を分散したポリマーに発光分子を浸透させてもよい。

#### [実施の形態 1 - 3]

15 図 6 は、本発明の実施の形態 1 - 3 に係る有機発光素子の概略断面図である。

本実施の形態 1 - 3 が上記実施の形態 1 - 2 と異なる点は、発光領域 2 3 中に発光分子 2 3 R · 2 3 G · 2 3 B 以外に、電荷輸送性物質 2 3 E … が存在することである。ここで、ポリマー 2 3 A と電  
20 荷輸送性物質 2 3 E とは、発光領域 2 3 の面内方向において連続的に配置されている。言い換えれば、電荷輸送性物質 2 3 E は、ポリマー 2 3 A 中に均一に分散されている。発光分子 2 3 R · 2 3 G · 2 3 B については、上記実施の形態 1 - 2 と同様、各々のストライプ状の陽極 2 2 … 上にそれぞれ分散されている。

#### 25 [実施の形態 1 - 4]

図 7 は、本発明の実施の形態 1 - 4 に係る有機発光素子の概略断面図である。

図 7 において、図 6 と異なる点は、電荷輸送材 2 3 E が発光領域 2 3 の面内方向において連続的に配置されているのではなく、発光

分子 2 3 R・2 3 G・2 3 B と同様に、面内方向において濃度に分布を持つことである。即ち、発光分子 2 3 R・2 3 G・2 3 B の濃度が大きい部分に電荷輸送性物質 2 3 E も高濃度で存在する。

[実施の形態 1 - 2 ~ 1 - 4 に関する共通事項]

5     ポリマー材料としては、電荷輸送性のポリマーが好ましく、中でもホール輸送性のポリマーが好ましい。ホール輸送性のポリマーは、そのキャリア移動度が  $1 \times 10^{-7} \text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$  以上のものが好ましく、特に、ポリ-N-ビニルカルバゾールが好ましい。

10    ホール輸送性ポリマーを用いた場合、電荷輸送材としては、電子輸送材を用いることが好ましい。さらに、電子輸送材のキャリア移動度は、 $5 \times 10^{-8} \text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$  以上のものが好ましい。特に、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、ピラジン誘導体、アルダジン誘導体、キノリノール錯体及びその誘導体が好ましい。また、電子輸送材の含有率は、上記ポリマーに対し  
15    て 30 ~ 120 重量%であることが好ましい。即ち、含有率が 30 重量%未満では電子輸送能が十分でなく、120 重量%より多ければポリマーへの分散性が悪くなる。

20    発光分子としては、ホール・電子再結合に応答して発光を示す蛍光物質あるいは燐光物質を用いればよく、特に強い蛍光あるいは燐光を示す物質としては、シアニン色素、メロシアニン色素、スチリル系色素、アントラセン誘導体、ポルフィリン誘導体、フタロシアニン誘導体、クマリン、DCM、ナイルレッドなどの色素及びレーザ色素を用いることができる。また、発光分子としては、該発光分子のイオン化ポテンシャルが上記ホール輸送性ポリマーのイオン化  
25    ポテンシャルよりも小さく、かつ該発光分子の電子親和力が上記電子輸送材の電子親和力よりも大きい物質が好ましい。

[実施の形態 1 - 5]

図 8 ~ 図 10 は、本発明の実施の形態 1 - 5 に係る有機発光素子の概略断面図である。図 8 ~ 図 10 において、25 はホール注入層、

26は電子注入層、23Gは発光分子、23Hはホール輸送性材料、  
23Iは電子輸送性材料である。

上記ホール注入層25は、陽極22から発光領域23へのホール  
注入を補助する目的で挿入される。ホール注入層25としては、そ  
5 のイオン化ポテンシャル( $I_p(h)$ )と、上記ポリマーのイオン化ポテ  
ンシャル( $I_p(p)$ )及び上記陽極のイオン化ポテンシャルあるいは仕  
事関数( $I_p(a)$ )との関係が、 $I_p(a) < I_p(h) < I_p(p)$ となる材料を用い  
ることが好ましい。特には、ポリアニリン誘導体、ポリチオフェン  
誘導体、アモルファスカーボンのうち、少なくとも1種からなるこ  
10 とが好ましい。

また、上記電子注入層26は、陰極24から発光領域23への電  
子注入を補助する目的で挿入される。電子注入層26としては、そ  
の電子親和力あるいは仕事関数が、上記陰極の仕事関数よりも小さ  
い材料を用いることが望ましい。特には、ジリチウムフタロシアニ  
15 ン、ジソディウムフタロシアニン、有機ホウ素錯化合物のうち少な  
くとも1種からなることが好ましい。

ホール輸送材23Hは、ホール注入層と同様に陽極22から発光  
領域23へのホール注入を補助する目的で導入される。ただしホー  
ル注入層25とは異なり、陽極22と発光領域23の間に層として  
20 挿入されるのではなく、発光領域中に直接分散される。

ホール輸送材23Hとしては、そのイオン化ポテンシャルが、上  
記ポリマーのイオン化ポテンシャルよりも小さい材料を用いること  
が好ましい。また、ホール輸送材の含有率は、上記ポリマーに対し  
て10～120重量%であることが好ましい。即ち、10重量%未  
25 満では十分なホール注入ができず、120重量%より多ければポリ  
マーへの分散性が悪くなる。

上記ホール注入層25、電子注入層26、ホール輸送材23Hの  
導入による効果を、図を用いて説明する。図11～図14は、本発  
明に係る有機発光素子のエネルギーダイアグラムである。

図 1 1 は、陽極／発光領域（ホール輸送性ポリマー＋電子輸送材＋発光分子（発光材））／陰極の構成の有機発光素子、図 1 2 は、陽極／ホール注入層／発光領域（ホール輸送性ポリマー＋電子輸送材＋発光分子）／陰極の構成の有機発光素子のエネルギーダイアグラム及びその動作機構を表す。前述した通り、有機発光素子に電圧を印加した場合、陽極からホールが、陰極から電子が発光領域に注入される。さらに詳しくは、図 1 1 に示すように、両キャリアは注入障壁のより小さい物質、即ちホールは発光領域中のホール輸送性ポリマーに、電子は発光領域中の電子輸送材に注入される。ここで、両キャリア（ホール及び電子）の注入障壁が小さいほど注入は容易に起こり、駆動電圧は低下する。従って電流効率が同じでも、駆動電圧の低減により、発光の電力効率（投入電力に対する発光の効率）を向上させることができる。そこで、例えばイオン化ポテンシャルが陽極とホール輸送性ポリマーの間にあるようなホール注入層を挿入した場合、図 1 2 に示すようにホール注入障壁は緩和され、駆動電圧も低減できる。さらに、図 1 1 に示すようにホール注入障壁が電子注入障壁に比べて大きい場合、ホール注入障壁を小さくすることにより、ホール注入量と電子注入量のバランスがよくなるため、前述したような効果で電流効率の向上も期待できる。また、図 1 3 は陽極／発光領域（ホール輸送性ポリマー＋電子輸送材＋発光分子）／電子注入層／陰極の構成の有機発光素子のエネルギーダイアグラムである。ホール注入障壁と同様に、電子注入障壁についても、陰極に比べて小さい電子親和力をもつ電子注入層を挿入することにより、図 1 3 に示すように障壁を小さくすることができ、駆動電圧の低減及び発光効率を向上できる。一方、図 1 4 は陽極／発光領域（ホール輸送性ポリマー＋ホール輸送材＋電子輸送材＋発光分子）／陰極の構成の有機発光素子のエネルギーダイアグラムである。この場合、ホール輸送材のイオン化ポテンシャルがホール輸送性ポリマーよりも小さいため、図に示すようにホールは陽極から直接発光



領域中のホール輸送材に注入され、ホール輸送性ポリマーに注入された場合に比べて注入障壁は小さくなる。従って、ホール注入層を挿入した場合と同様に、駆動電圧を低減できると同時に電流効率の向上も期待できる。

- 5       もちろん、上記構成の組み合わせ、即ちホール注入層及び電子注入層の両方を挿入、あるいは発光領域をホール輸送性ポリマー＋ホール輸送材＋電子輸送材＋発光分子として、さらに電子注入層を挿入する、あるいは発光領域の膜厚方向において発光分子、各電荷輸送材の濃度が分布を持つ等の構成としてもよい。

- 10       尚、上記実施の形態 1-1～1-5 では、単純マトリクス方式の有機発光素子の例を示したが、例えば、薄膜トランジスタ上に上記構成の発光素子を形成し、アクティブマトリクス方式のディスプレイパネルとしてもよい。

- 15       次に、上記実施の形態に基づいた実験例について、さらに詳細に説明する。

(実験例 1)

上記実施の形態 1-1 で示した図 3 の工程に従い、有機発光素子を下記の通り作製した。

- 20       即ち、基板 1 として、厚さ 0.7 mm のガラス基板を用い、この上に陽極 2 として、ITO をスパッタ法により成膜した。尚、ITO の膜厚は約 1000 Å、シート抵抗は約 15 Ω/□とし、フォトリソグラフィーにより、幅 300 μm のストライプ状にパターニングした。

- 25       次に、上記基板を洗浄、酸素プラズマ処理した後、ポリマー 3A としてポリ-N-ビニルカルバゾール (PVK) (分子量約 28000) を成膜した。PVK はホール輸送性ポリマーであり、そのキャリア移動度は約  $2 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$  である。成膜は、PVK 300 mg をトルエン 30 ml に溶かした溶液を用いて、スピンコート法により行った。スピンコートは、スピノ用いて密閉した状態

で 5 0 0 r p m ・ 1 0 秒、1 0 0 0 r p m ・ 3 0 秒の条件で行った。

次に、ホットプレートを用いて 1 1 0 °C で 1 分間熱処理を行った。

P V K の膜厚は約 1 0 0 0 Å であった。

次に、市販のインクジェットプリンターを用いて、発光分子を所  
5 望の I T O 電極上の位置に滴下し、発光領域を形成した。発光分子  
は、赤色用 ( 3 R ) としてナイルレッドを、緑色用 ( 3 G ) として  
クマリン 6 を、青色用 ( 3 B ) としてクマリン 4 7 を用いた。各発  
光分子は、それぞれ 1 m g をクロロホルム 1 0 m l に溶かした溶液  
を用いて、インクヘッド 7 から吐出した。各発光分子を滴下した際、  
10 その都度ホットプレートを用いて 1 1 0 °C で 1 分間熱処理を行った。

最後に、陰極 4 として L i / A l 積層電極を真空蒸着法により成  
膜した。成膜は、真空度約  $5 \times 10^{-6}$  T o . r r 下で行い、まず L i  
を約 0 . 5 Å / s e c のレートで 1 0 Å 蒸着した後、A l を約 3 0  
Å / s e c で 1 5 0 0 Å 蒸着した。陰極の形状は、蒸着マスクによ  
15 り、陽極 2 と直交するストライプ状とし、幅は 3 0 0 μ m とした。

各材料のエネルギーレベルについては、I T O のイオン化ポテン  
シャルが 4 . 9 e V 、P V K のイオン化ポテンシャルが 5 . 6 e V 、  
電子親和力が 2 . 0 e V 、ナイルレッドのイオン化ポテンシャルが  
5 . 3 e V 、電子親和力が 3 . 5 e V 、クマリン 6 のイオン化ポテ  
20 ンシャルが 5 . 4 e V 、電子親和力が 2 . 9 e V 、クマリン 4 7 の  
イオン化ポテンシャルが 5 . 4 e V 、電子親和力が 2 . 5 e V であ  
る。L i の仕事関数が 2 . 9 e V 、A l の仕事関数が 4 . 3 e V で  
ある。

また、発光領域 3 中の発光分子の濃度分布を調べるため、クマリ  
25 ン 6 を滴下した部分の膜厚方向の元素分析を行ったところ、クマリ  
ン 6 にのみ含有されるイオウの量が、陰極側から陽極側に行くにし  
たがって少なく、さらに陽極付近にはクマリン 6 は存在しないこと  
が分かった。

こうして作製した有機発光素子において、選択されたストライプ

状の陽極及び陰極間に順方向に10V程度の電圧を印加すると、両電極に挟まれた部分(画素)が、それぞれ発光分子に対応した色(ナイルレッド:赤、クマリン6:緑、クマリン47:青)で明るく発光した。即ち、所望の位置(画素)を所望の色で発光させることが可能な単純マトリクスディスプレイが作製できた。

また、各発光色の電流効率( $\text{cd}/\text{A}$ )、輝度 $100\text{cd}/\text{m}^2$ 時の駆動電圧、及び輝度 $100\text{cd}/\text{m}^2$ 時の電力効率( $\text{lm}/\text{W}$ )を表1に示す。

10 表 1

	電 流 効 率 ( $\text{cd}/\text{A}$ )			駆 動 電 圧 ( $100\text{cd}/\text{m}^2$ 時)(V)			電 力 効 率 ( $100\text{cd}/\text{m}^2$ 時)( $\text{lm}/\text{W}$ )		
	赤	緑	青	赤	緑	青	赤	緑	青
実験例 1	1.5	3.0	1.7	12.0	11.0	12.0	0.4	0.9	0.4
実験例 2	3.0	6.0	3.4	10.4	9.0	10.0	0.9	2.1	1.1
実験例 3	3.3	7.2	4.0	9.2	8.0	9.0	1.1	2.8	1.4
実験例 4	1.8	4.1	2.0	10.5	9.2	10.3	0.5	1.4	0.6
実験例 5	1.9	4.2	2.0	10.5	9.0	10.0	0.6	1.5	0.6
実験例 6	1.9	4.2	2.1	10.4	9.0	10.1	0.6	1.5	0.7
実験例 7	1.8	4.1	2.0	10.5	9.0	10.0	0.5	1.4	0.6
実験例 8	1.7	4.0	2.1	10.2	8.8	9.9	0.5	1.4	0.7
実験例 9	1.8	4.5	2.2	10.3	8.9	9.9	0.5	1.6	0.7
実験例 10	3.5	7.1	3.8	9.0	7.6	8.7	1.2	2.9	1.4
実験例 11	1.6	3.2	1.5	12.0	11.0	12.1	0.4	0.9	0.4
実験例 12	3.0	6.1	3.2	10.4	9.0	10.1	0.9	2.1	1.0
実験例 13	3.4	7.0	4.0	9.2	8.0	9.1	1.2	2.7	1.4
実験例 14	1.5	3.1	1.6	10.5	9.2	10.2	0.4	1.1	0.5
実験例 15	3.0	6.1	3.0	10.5	9.0	10.0	0.9	2.1	0.9
実験例 16	3.5	7.2	3.9	10.4	9.0	10.1	1.1	2.5	1.2

(実験例 2)

実験例 1 において、ポリマー 3 A として PVK を成膜する代わりに、2-(4-ピフェニル)-5-(4-tert ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(PBD)を分散した PVK を成膜した。PBD は電子輸送材であり、そのキャリア移動度は約  $2 \times 10^{-6} \text{cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$  である。また、イオン化ポテンシャルは 6.1 eV、電子親和力は 2.4 eV である。成膜は、PVK 300 mg 及び PBD 180 mg をトルエンとクロロホルム 1:1 の混合溶

媒 3 0 m l に溶かした溶液を用いて、実験例 1 と同じ条件でスピ  
コート法により行った。

この素子の特性を（表 1）に示す。

（実験例 3）

- 5      実験例 1 において、発光分子を滴下する代わりに各発光分子と P  
B D（電子輸送材）の混合溶液を滴下した。

即ち、1 m g のナイルレッド + P B D 1 0 0 m g、1 m g のクマ  
リン 6 + P B D 1 0 0 m g、1 m g のクマリン 4 7 + P B D 1 0 0  
m g をそれぞれトルエンとクロロホルム 1 : 1 の混合溶媒 3 0 m l  
10      に溶かした溶液をインクジェット法により、P V K 上に滴下した。

この素子の特性を（表 1）に示す。

（実験例 4）

実験例 1 において、陽極と発光領域の間にホール注入層を挿入し  
た。

- 15      即ち、図 8 に示す素子構成とした。ホール注入層としては、市販  
のポリチオフェン誘導体を用いて、P V K を成膜する前にスピ  
コート法により形成し、膜厚は 1 5 0 Å とした。ここで使用したポリ  
チオフェン誘導体のイオン化ポテンシャルは、5 . 3 e V である。

この素子の特性を（表 1）に示す。

- 20      （実験例 5）

実験例 4 のホール注入層として、ポリチオフェン誘導体の代わり  
に上記ポリチオフェン誘導体と同等のイオン化ポテンシャルを示す  
市販のポリアニリン誘導体を用いた。ポリアニリン誘導体の成膜は  
実験例 2 と同様に行い、膜厚は 1 5 0 Å とした。

- 25      この素子の特性を（表 1）に示す。

（実験例 6）

実験例 4 のホール注入層として、ポリチオフェン誘導体の代わり  
にアモルファスカーボンを用いた。アモルファスカーボンは、スバ  
ッタ法により形成し、膜厚は 1 0 0 Å とした。アモルファスカーボ

ンのイオン化ポテンシャルは、 $5.2 \text{ eV}$ である。

この素子の特性を（表 1）に示す。

（実験例 7）

実験例 1 において、発光領域と陰極の間に電子注入層を挿入した。

- 5 即ち、図 9 に示す素子構成とした。電子注入層としては、ジリチウムフタロシアニンを用い、P V K 上に各発光分子を滴下した後、真空蒸着法により成膜した。さらに続けて陰極として Al を成膜した。電子注入層及び陰極の形成は、ジリチウムフタロシアニンを約  $0.3 \text{ Å/s e c}$  のレートで  $10 \text{ Å}$  成膜した後、Al を約  $30 \text{ Å/s e c}$  で  $1500 \text{ Å}$  成膜した。ジリチウムフタロシアニンの電子親和力は  $3.0 \text{ eV}$  である。
- 10

この素子の特性を（表 1）に示す。

（実験例 8）

- 実験例 7 の電子注入層として、ジリチウムフタロシアニンの代わり  
15 りにこれと同等の電子親和力を示すジソディウムフタロシアニンを用いた。ジソディウムフタロシアニンの成膜は実験例 7 と同様に行い、膜厚は  $10 \text{ Å}$  とした。

この素子の特性を（表 1）に示す。

（実験例 9）

- 20 実験例 7 の電子注入層として、ジリチウムフタロシアニンの代わりに 4, 4, 8, 8-テトラキス（1H-ピラゾール-1-イル）ピラザボールを用いた。4, 4, 8, 8-テトラキス（1H-ピラゾール-1-イル）ピラザボールの成膜は実験例 7 と同様に行い、膜厚は  $10 \text{ Å}$  とした。4, 4, 8, 8-テトラキス（1H-ピラゾール-1-イル）ピラザボールの電子親和力は  $2.3 \text{ eV}$  である。
- 25

この素子の特性を（表 1）に示す。

（実験例 10）

実験例 3 において、ポリマー 3 A として P V K を成膜する代わりにホール輸送材として N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス（3

ーメチルフェニル) - 1, 1'-ビフェニル - 4, 4'-ジアミン (TPD) を分散した PVK を成膜した。即ち、図 10 に示す素子を作製した。TPD のイオン化ポテンシャルは 5.4 eV である。成膜は、PVK 300 mg 及び PBD 180 mg をトルエンとクロロホルム 1 : 1 の混合溶媒 30 ml に溶かした溶液を用いて、実験例 1 と同じ条件でスピンコート法により行った。成膜後は、実験例 3 と同様に各発光分子と PBD の混合溶液を滴下した。

この素子の特性を (表 1) に示す。

(実験例 1 1)

10 図 4 の工程に従い、有機発光素子を作製した。図 4 (c) までの工程を実験例 1 と同様に行った後、各発光分子を蒸気処理によりポリマー 3 A に浸透させ、発光領域を形成した。発光分子は、実験例 1 と同様、ナイルレッド、クマリン 6、クマリン 47 を用いた。蒸気処理は以下の通り行った。即ち、まず、ITO からなるストライプ状陽極 2 のうち、赤色用の電極上のみ開口部を設けたマスクを基板上に設置した後、10 mg のナイルレッドをトルエン 10 ml に溶かした溶液を加熱して発生する蒸気にさらした。さらに、ホットプレートにより、110℃で1分間熱処理を行った。こうして、所望の位置にナイルレッドを浸透させた。続いて、緑色用の電極上に開口部が来るようにマスクを移動し、10 mg のクマリン 6 をトルエン 10 ml に溶かした溶液を加熱して発生する蒸気にさらし、110℃・1分間熱処理した。続いて同様にマスクを移動した後、10 mg のクマリン 47 をトルエン 10 ml に溶かした溶液を用いて蒸気処理し、110℃・1分間熱処理した。最後に、陰極 24 として Li / Al 積層電極を実験例 1 と同様に真空蒸着法により成膜した。

この素子の特性を (表 1) に示す。

(実験例 1 2)

実験例 1 1 において、ポリマー 3 A として PVK を成膜する代わ

りに、2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(PBD)を分散したPVKを成膜した。成膜は、PVK 300 mg 及びPBD 180 mg をトルエンとクロロホルム1:1の混合溶媒30 mlに溶かした溶液を用いて、実験例1と同じ条件でスピンコート法により行った。

この素子の特性を(表1)に示す。

(実験例13)

実験例11において、発光分子の蒸気処理を行う代わりに各発光分子とPBDの混合溶液を用いて蒸気処理を行った。即ち、1 mg のナイルレッド+PBD 100 mg、1 mg のクマリン6+PBD 100 mg、1 mg のクマリン47+PBD 100 mg をそれぞれトルエンとクロロホルム1:1の混合溶媒30 mlに溶かした溶液を用いて、PVK上に蒸気処理を行った。

この素子の特性を(表1)に示す。

15 (実験例14)

実験例1において、発光分子を滴下する代わりに印刷法により発光分子を浸透させた。実験例1と同様の工程で基板上にPVKを成膜した後、ナイルレッド1 mg をトルエン10 mlに溶かした溶液を用いて、所望のITO電極上にスクリーン印刷法により塗布し、ホットプレートにより10℃で1分間熱処理した。同様にクマリン6、クマリン47それぞれ1 mg をトルエン10 mlに溶かした溶液を用いて、所望のITO電極上にスクリーン印刷法により塗布し、ホットプレートにより110℃で1分間熱処理した。最後に、陰極24としてLi/A1積層電極を実験例1と同様に真空蒸着法により成膜した。

この素子の特性を(表1)に示す。

(実験例15)

実験例14において、ポリマー3AとしてPVKを成膜する代わりに、2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)

ー 1, 3, 4-オキサジアゾール (PBD) を分散した PVK を成膜した。成膜は、PVK 300 mg 及び PBD 180 mg をトルエンとクロロホルム 1 : 1 の混合溶媒 30 ml に溶かした溶液を用いて、実験例 1 と同じ条件でスピンコート法により行った。

5 この素子の特性を (表 1) に示す。

(実験例 16)

実験例 14 において、発光分子のスクリーン印刷を行う代わりに各発光分子と PBD の混合溶液を用いてスクリーン印刷を行った。即ち、1 mg のナイルレッド + PBD 100 mg、1 mg のクマリン 10  
10 ン 6 + PBD 100 mg、1 mg のクマリン 47 + PBD 100 mg をそれぞれトルエンとクロロホルム 1 : 1 の混合溶媒 30 ml に溶かした溶液を、PVK 上にスクリーン印刷法により塗布した。

この素子の特性を (表 1) に示す。

(第 2 の発明群における実施の形態)

15 第 2 の発明群の発光素子は、陽極と陰極との間に発光領域を有し、上記発光領域は発光に寄与する物質を含み、上記陽極と上記陰極との間には、上記発光に寄与する物質を特定の領域に集約するための集約化手段を有することを特徴としている。より具体的には、陽極と陰極との間に発光領域を有し、上記発光領域は発光に寄与する物  
20 質を含み、上記陽極と上記陰極との間に多孔質化あるいは粗面化された領域を有し、該多孔質化された領域の表面または表面近傍に、上記発光に寄与する物質を配置している。

上記のように、多孔質化あるいは粗面化された領域を有することにより、発光に寄与する物質をある特定領域 (多孔質化あるいは粗  
25 面化された領域の表面または表面近傍) に集約し、発光に寄与する物質が存在する、ホールと電子との再結合領域の表面積を増大させることとなるので、高輝度発光を実現することが可能となる。

また、上記構成の発光素子を、表示装置や照明装置に適用することにより、高輝度性能を有する表示装置や照明装置を実現すること



ができる。

以下に示す実施の形態 2-1 では、発光領域を多孔質化した発光素子の構成、実施の形態 2-2 では、発光領域を粗面化した構成、さらに、実施の形態 2-3 では、電荷輸送領域を多孔質化あるいは粗面化した構成について具体的に説明する。

{実施の形態 2-1}

図 15 は、本発明の実施の形態 2-1 に係る有機発光素子の概略断面図である。

図 15 に示すように、有機発光素子 100 は、基板（図示せぬ）上に形成された陽極 105 と、上記陽極 105 に対向配置された陰極 101 と、上記陽極 105 と上記陰極 101 との間に配置された発光領域 109 と、上記陰極 101 と上記発光領域 109 との間に配置された平坦化層 102 と、を備えた構成である。

上記発光領域 109 は、上記陰極 101 側が多孔質化された有機層 104 と、該有機層 104 の多孔質化された表面に配置された発光分子 103…と、を備えている。

更に、上記有機層 104 上には、電荷輸送性物質からなる平坦化層 102 が形成され、該平坦化層 102 上に陰極 101 が積層されている。

上記構成のように、発光分子 103…を、多孔質化により表面積を増大させた有機層 104 の表面上に集約すると共に、発光分子 103…の存在するホールと電子の再結合領域を多孔質化し、表面積を増大させることにより、高輝度発光を実現することができる。また、上記多孔質化された有機層 104 の表面に電荷輸送性物質からなる平坦化層 102 を設けることにより、近接する電極（陰極 101）との接合面を平滑に保持し、リーク電流を防止すると共にホールあるいは電子の注入及び輸送を効率よく行える。

尚、上記有機層 104 の多孔質内部に電荷輸送性物質を充填することによっても、ホールあるいは電子の注入及び輸送を効率よく行

ることができる。

上記発光分子 103 としては、クマリン 6 や D C M、フェノキサ  
ゾン 9 といったレーザー色素のような量子効率が 1 に近い色素が好  
ましい。この他にナフタレン、アントラセン、ピレン、ナフタセン  
5 等の縮合環及びその誘導体も好ましく、例えば、ルブレンも量子効  
率は 1 に近く有能な発光材料である。また、上記 A l q やその誘導  
体、ベリリウムベンゾキノリン等の金属錯体も好ましい。

上記有機層 104 の多孔質化された内部に充填する、あるいは上  
記平坦化層 102 を構成する電荷輸送性物質は、多孔質化される有  
10 機層 104 が輸送する電荷とは逆極性の電荷を輸送する必要がある。

また、多孔質化される有機層 104 がホール輸送性有機層として  
形成された場合には、上記電荷輸送性物質として電子輸送材料が選  
ばれ、逆に、電子輸送性有機層として形成された場合には、上記電  
荷輸送性物質としてホール輸送材料が選ばれる。

15 電子輸送材料としては、多孔質内部に入りやすい低分子系材料が  
好ましく、A l q、トリス（4-メチル-8-キノリノラト）アル  
ミニウム等の金属錯体、4, 4, 8, 8-テトラキス（1 H ピラ  
ゾール-1-イル）ピラザボール等の電子不足化合物、3-（2-  
ベンゾチアゾリル）-7-ジエチルアミノクマリン等が好ましい。  
20 また、バソクプロイン、トリアゾール誘導体等のホールブロック機  
能を有する材料も好ましい。

また、ホール輸送材料としては、トリフェニルアミンを基本骨格  
として持つ誘導体が好ましい。例えば、特開平 7-126615 号  
公報記載のテトラフェニルベンジジン化合物、トリフェニルアミン  
25 3 量体、ベンジジン 2 量体、特開平 8-48656 号公報記載の種々  
のトリフェニルジアミン誘導体、特開平 7-65958 号公報記載  
の M T P D（通称 T P D）が好ましい。

また、多孔質内部に充填する場合には、電荷注入材料に置き換える  
こともできる。

電子注入材料としては、特願平 1 1 - 2 1 4 7 1 2 号公報記載のジリチウムフタロシアニン、ジソディウムフタロシアニン、マグネシウムポルフィン、4, 4, 8, 8-テトラキス(1H-ピラゾール-1-イル)ピラザボール等が好ましい。ホール注入材料として  
5 は、銅フタロシアニン、5, 10, 15, 20-テトラフェニル-2 1 H, 2 3 H-ポルフィン銅等が好ましい(尚、後述する実施の形態 2-2 において、粗面化された表面を平滑化して 10 nm 程度とする場合にも、電荷注入材料に置き換えることもできる)。

多孔質内部に充填する材料は、上記低分子材料の他、高分子材料  
10 も選ぶことができるが、塗布だけでは十分に充填できない恐れがあるので、塗布後、ガラス転移点程度の熱処理等、細部に浸透させる手段を施す必要がある(尚、後述する実施の形態 2-2 において、粗面化された表面を充填する場合にも、高分子材料を選ぶことができる)。

15 上記有機層 104 を構成する材料としては、多孔質化を考慮すると有機高分子が好ましい。特に多孔質化する場合はウェットエッチング処理されることから高分子系有機化合物が選ばれる(尚、後述する実施の形態 2-2 において、粗面化された表面を充填する場合にも、有機高分子が好ましい)。

20 有機層を構成する有機高分子としては、ポリ-p-フェニレンビニレン(PPV)、ポリビニルカルバゾール(PVK)、ポリメチルメタクリレート(PMMA)、ポリフルオレン等とその誘導体等、汎用的な材料を用いることができる。さらに、電荷輸送特性を向上させることを目的として、電子輸送材料やホール輸送材料を混合し  
25 てもよく、前述したような汎用的な材料を利用することができる。

有機層の膜厚は、10 ~ 1000 nm とすることが好ましい。多孔質化される領域は有機層全体の厚みに対し 1/3 程度以内が好ましく、特には 5 ~ 50 nm が好ましい。即ち、有機層の膜厚を 10 nm 以下と薄くすると、電圧を印加したときにショートしてしまい、

1 0 0 0 n m 以上とすると、印加電圧が高くなり、発光効率も低下してしまふためである。また、多孔質化される領域が有機層全体の 1 / 3 程度あるいは 5 0 n m 以上となると、有機層の密度が低下するため、電荷輸送性能が低下したり、膜の剛直性や基板との密着性が弱くなる。また、多孔質化領域が 5 n m 以下では前記したような効果  
5 効果が現れにくい。(尚、後述する実施の形態 2 - 2 において、粗面化される領域も上記と同様である)。塗布型の有機層においては、電荷の注入及び輸送の観点からまず均一な膜を成膜する必要がある。有機高分子膜はミクロに見た場合は疎であるが、ここで言う均一な  
10 膜とはマクロに見た場合のことをいい、成膜された表面は少なくとも表面粗さ 5 n m 以内におさめる必要がある。有機高分子膜の多孔質化あるいは粗面化とは、その均一に成膜された膜の表面粗さをさらに増加させるものである。

次に、有機発光素子の製造方法について、図 1 6 を用いて説明する。図 1 6 は、本発明の実施の形態 2 - 1 に係る有機発光素子の製造方法を示す概略断面図である。  
15

(1) まず、図 1 6 (a) に示すように、基板 1 0 6 上に陽極 1 0 5 を形成した(陽極形成工程)。

(2) 次に、図 1 6 (b) に示すように、上記基板 1 0 6 上に媒体 1 0 4 ' を配置した。尚、上記媒体 1 0 4 ' とは、有機高分子と、  
20 多孔質化のため溶出可能な有機材料との 2 種類を溶媒に溶かして得られた溶液を塗布して得られた塗布膜を意味する(媒体配置工程)。

(3) 次に、図 1 6 (c) に示すように、上記媒体 1 0 4 ' を加熱乾燥あるいは風乾等により乾燥させ、上記有機高分子は不溶で上  
25 記有機材料のみが可溶な溶媒によって、上記媒体 1 0 4 ' を処理することにより、有機材料のみを溶出した。そして、有機材料の存在していた部分を空洞化することによって有機高分子層の多孔質化を行って、有機層 1 0 4 を形成した(多孔質化工程)。

尚、上記多孔質化工程において、有機層 1 0 4 の少なくとも一部、

より具体的には、上記有機層 104 の陽極側 105 側あるいは陰極側 101 側のうち少なくとも一方を多孔質化すればよい。

(4) 次に、図 16 (d) に示すように、上記有機層 104 上に、発光分子 103 …を分散配置した(発光分子配置工程)。

5 (5) 次に、図 16 (e) に示すように、上記有機層 104 上に、電荷輸送性物質からなる平坦化層 102 を形成した(平坦化層形成工程)。

(6) そして、図 16 (f) に示すように、上記平坦化層 102 上に陰極 101 を形成した(陰極形成工程)。

10 尚、有機層 104 の多孔質化の方法としては、上記の方法のような溶解度の差を利用する方法に限るものではない。例えば、紫外線照射によって有機高分子を硬化させることにより不溶化する方法や、加熱処理によって硬化させ、不溶化する方法などがある。

また、有機高分子と共に混合する有機材料の割合は 10 ~ 50 %  
15 が好ましい。なぜなら、有機材料の割合が 10 % よりも少ない場合、膜(有機層)を十分多孔質化できず、50 % よりも多い場合、膜の密度が低下するため、膜全体の電荷輸送性能が低下したり、剛直性や基板との密着性が弱くなってしまうためである。さらには、上記有機材料の割合は 20 ~ 30 % が好ましい。

20 また、選ばれる有機材料は有機高分子の他、溶媒の選択が拡がるように低分子量化したオリゴマー等を使用することができる。

発光分子の分散については蒸着方法が好ましい。また、溶液状にして蒸気処理することも可能である。多孔質化有機層の内部に浸透させる方法としても、発光分子分散後、蒸気処理を行うことが好ましい(尚、後述する実施の形態 2-2 においても、発光分子分散後、  
25 蒸気処理を行うことが好ましい)。

有機発光素子は、少なくとも一方の電極を透明ないし半透明にすることにより、面発光を取り出すことが可能となる。通常、正孔注入電極としての陽極には ITO (インジウム錫酸化物) 膜を用いる

ことが多い。他に、酸化錫、Ni、Au、Pt、Pd等が挙げられる。ITO膜はその透明性を向上させ、あるいは抵抗率を低下させる目的で、スパッタ、エレクトロンビーム蒸着、イオンプレーティング等の成膜方法が採用されている。

- 5        また、膜厚は必要とされるシート抵抗値と可視光透過率から決定されるが、有機発光素子では比較的駆動電流密度が高いため、シート抵抗値を小さくするため100nm以上の厚さで用いられることが多い。

- 10        電子注入電極としての陰極には、Tangらの提案したMgAg合金あるいはAlLi合金など、仕事関数が低く電子注入障壁の低い金属と、比較的仕事関数が大きく安定な金属との合金が用いられることが多い。また、仕事関数の低い金属を有機層側に成膜し、この低仕事関数金属を保護する目的で、仕事関数の大きな金属を厚く積層してもよく、Li/Al、LiF/Alのような積層電極を用
- 15        いることができる。これら陰極の形成には蒸着法やスパッタ法が好ましい。また、ジリチウムフタロシアニン、ジソディウムフタロシアニン、マグネシウムポルフィン、4,4,8,8-テトラキス(1H-ピラゾール-1-イル)ピラザボール等の電子注入材料を用いた場合には、仕事関数が大きく安定な金属のみで電極を構成できる
- 20        ので、酸化等の反応を受けにくく、寿命特性を向上できる。

基板は、上述した薄膜を積層した有機発光素子を担持できるものであれば良く、また、有機層内で生じた発光を取り出せるように透明ないし半透明の材料であれば良く、コーニング1737等のガラス、あるいはポリエステルその他の樹脂フィルム等を用いる。

- 25        また、図17は、本発明の実施の形態2-1に係る有機発光素子の変形例を示す概略断面図である。

図17に示すように、有機発光素子107は、有機層104の多孔質化された表面近傍に、発光に寄与する物質である発光分子103...を浸透させた構成である。尚、有機層104の多孔質化された

表面近傍に発光分子 1 0 3 … を浸透させる方法としては、蒸気処理によって行うことができる。

このような構成とすることによっても、発光分子 1 0 3 … を、多孔質化された有機層 1 0 4 の表面近傍に集約することができ、また、  
5 発光に寄与する物質が存在する、ホールと電子との再結合領域の表面積を増大させることとなるので、高輝度発光を実現することが可能となる。また、上記発光分子は、有機層 1 0 4 の表面および表面近傍の両方に配置されていてもよい。

(実験例 2 - 1)

10 実験例 2 - 1 は、上記実施の形態 2 - 1 の有機発光素子の具体例を示すものである。以下に説明する。

ポリビニルカルバゾールと低重合度のブチラール樹脂（積水化学工業株式会社製、エスレック B、品番 B L - S）とを重量比 8 0 : 2 0 の割合でトルエンに溶解して溶液を得た。

15 次に、上記溶液を、ITO を成膜したガラス基板上にスピコートし、膜厚 1 0 0 n m の有機層を得た。

有機層を形成した ITO 基板を N, N - ジメチルホルムアミド中に浸漬し、ブチラール樹脂（エスレック B）のみを溶解除去した後、2 0 0 °C の加熱乾燥を行い、多孔質化有機層を得た。

20 真空槽内で室温まで戻した後、発光分子としてレーザ色素クマリン 6 を 0 . 0 1 n m / s の蒸着速度で 1 0 秒間抵抗加熱による真空蒸着法により分散した。

引き続き、電子注入材料として 4 , 4 , 8 , 8 - テトラキス（1 H - ピラゾール - 1 - イル）ピラザボールを 0 . 1 n m / s の蒸着  
25 速度で 1 分間蒸着した。

最後に、Al 電極を 1 n m / s の蒸着速度で膜厚約 1 0 0 n m に形成し、有機発光素子を得た。

この素子の断面を SEM で観察したところ、直径 3 ~ 6 n m 程度の多孔質膜が形成され、多孔質部分を電子注入材料が充填している

ことを確認した。この素子に直流電圧を印可して評価したところ、クマリン 6 の緑色発光が得られ、表 2 に示すように、電流効率は 8.0 cd/A で、安定に光り続けた。

表 2

	電 流 効 率 (cd/A)
実験例 2 - 1	8.0
実験例 2 - 2	8.2
実験例 2 - 3	7.5
実験例 2 - 4	3.2

5

## ( 実験例 2 - 2 )

実験例 2 - 2 の有機発光素子は、実験例 2 - 1 の電子注入材料の蒸着において、多孔質内を充填する代わりに平坦化層を設けることを目的として、4, 4', 8, 8'-テトラキス(1H-ピラゾール-1-イル)ピラザボールを 0.1 nm/s の蒸着速度で 2 分間蒸着し平坦化層を得た。それ以外は、実験例 2 - 1 と同様にして作製した。

この素子の断面を SEM で観察したところ、直径 3 ~ 6 nm 程度の多孔質膜上に、平坦化層が形成されていることを確認した。この素子に直流電圧を印可して評価したところ、クマリン 6 の緑色発光が得られた。また、表 2 に示すように、電流効率は 8.2 cd/A で、安定に光り続けた。

## ( 実験例 2 - 4 )

実験例 2 - 4 は、上記実験例 2 - 1、2 - 2 との比較するためのもの(有機層の多孔質化をおこなっていない構成)である。

即ち、ポリビニルカルバゾールと、電子輸送材料として 2-(4-ビフェニリル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾールと、発光分子料としてクマリン 6 とを重量比 100 : 40 : 0.2 の割合でトルエン : THF = 1 : 1 混合溶媒中に溶解して溶液を得た。

その後、上記溶液を、ITO を成膜したガラス基板上にスピナー



で塗布し、膜厚 100 nm の有機層を形成した。

この上に電子注入電極として 1 nm の Li と Al からなる陰極を 100 nm 形成し、有機発光素子を得た。

この素子に直流電圧を印可して評価したところ、クマリン 6 の緑  
5 色発光が得られ、表 2 に示すように、電流効率は 3.2 cd/A であった。

このように、有機層を多孔質化した有機発光素子は、多孔質化しない場合に比較して、飛躍的に電流効率が向上した。

[実施の形態 2 - 2]

10 本実施の形態 2 - 2 は、発光領域を粗面化した構成の有機発光素子に関するものである。図 18 は、本発明の実施の形態 2 - 2 に係る有機発光素子の概略断面図である。

図 18 に示すように、有機発光素子 110 は、陽極 105 と、上記陽極 105 に対向配置された陰極 101 と、上記陽極 105 と上  
15 記陰極 101 との間に配置された発光領域 113 と、上記陰極 101 と上記発光領域 113 との間に配置された平坦化層 102 と、を備えた構成である。

上記発光領域 113 は、上記陰極 101 側が粗面化された有機層 120 と、該有機層 120 の粗面化された表面に配置された発光分子 103 … と、を備えている。  
20

更に、上記有機層 120 上には、電荷輸送性物質からなる平坦化層 102 が形成され、該平坦化層 102 上に陰極 101 が積層されている。

上記構成のように、発光分子 103 … を粗面化により表面積を増  
25 大させた発光領域 113 (有機層 120 表面) に集約すると共に、発光分子 103 … の存在するホールと電子の再結合領域を粗面化し、表面積を増大させることにより、高輝度発光を実現することができる。尚、上記実施の形態 2 - 1 の場合と同様に、有機層の表面近傍に発光分子を浸透させた構成としてもよいし、有機層の表面および

表面近傍の両方に発光分子を配置してもよい。

次に、有機発光素子の製造方法について図 19 を用いて説明する。  
図 19 は、本発明の実施の形態 2 - 2 に係る有機発光素子の製造方法を示す概略断面図である。

5       (1) 上記実施の形態 2 - 1 で示した製造方法の工程 (1) と同様に、基板 106 上に陽極 105 を形成した (図 19 (a))。

      (2) 次に、上記陽極 105 上に有機層を形成する有機高分子によって媒体である塗布膜 120' を形成した (図 19 (b))。

10       (3) 次に、上記塗布膜 120' を、酸素ガスを導入したリアクティブイオンエッチング (RIE) 等により、ドライエッチングを行い、塗布膜 120' 表面を粗面化し、有機層 120 を形成した (図 19 (c))。

      (4) 次に、上記有機層 120 の粗面化した表面上に、発光分子 103 を分散配置させた (図 19 (d))。尚、上記ドライエッチングは、パレル型、平行平板型等の汎用的な型式で行ってよく、また  
15       有機層の状態によっては Ar ガス等も同時に導入するなどしてよい。

      (5) 次に、上記有機層 120 上に、上記実施の形態 2 - 1 と同様にして、電荷輸送性物質からなる平坦化層 102 を形成した (図 19 (e))。

20       (6) 次に、上記平坦化層 102 上に陰極 101 を形成した (図 19 (f))。

      (実験例 2 - 3)

      実験例 2 - 3 は、上記実施の形態 2 - 2 の有機発光素子の具体例を示すものである。即ち、ポリビニルカルバゾールをトルエンに溶  
25       解した溶液を、ITO を成膜したガラス基板上にスピコートし膜厚 100 nm の有機層を得た。

      次に、有機層を形成した ITO 基板を、平行平板型のドライエッチング装置中で、酸素流量 60 sccm、圧力 40 mTorr、高周波出力 100 W の条件で 1 分間の粗面化処理を行った後、真空槽

内に配置した。

次に、発光分子としてレーザ色素クマリン 6 を  $0.01 \text{ nm/s}$  の蒸着速度で 10 秒間抵抗加熱による真空蒸着法により分散した。

引き続き、電子注入材料として 4, 4, 8, 8-テトラキス (1  
5 H-ピラゾール-1-イル) ピラザボールを  $0.1 \text{ nm/s}$  の蒸着速度で 2 分間蒸着した。

最後に、Al 電極を  $1 \text{ nm/s}$  の蒸着速度で膜厚約  $100 \text{ nm}$  に形成し、有機発光素子を得た。

この素子の断面を SEM で観察したところ、有機層には  $\pm 3 \text{ nm}$   
10 程度の粗表面が形成され、電子注入材料による平坦化層が形成されていることを確認した。この素子に直流電圧を印可して評価したところ、クマリン 6 の緑色発光が得られた。また、上記表 2 に示すように、電流効率は  $7.5 \text{ cd/A}$  で、安定に光り続けた。

このように、実験例 2-3 に示す有機発光素子は、有機層を粗面  
15 化することにより、実験例 2-4 に示す有機発光素子に比較して、電流効率が飛躍的に向上した。

#### [実施の形態 2-3]

上記実施の形態 2-1、2-2 の有機発光素子は、発光領域を多孔質化あるいは粗面化することにより、発光効率を向上させたものであるが、本実施の形態 2-3 では、電荷輸送領域を粗面化した構成の有機発光素子に関して説明する。図 20 は、本発明の実施の形態 2-3 に係る有機発光素子の概略断面図である。

図 20 に示すように、有機発光素子 115 は、陽極 105 と、上記陽極 105 に対向配置された陰極 101 と、上記陽極 105 と上記陰極 101 との間に配置された発光領域 117 と、該発光領域 117 と上記陽極 105 との間に配置された電荷輸送層 116 と、を備えた構成である。

上記電荷輸送層 116 の上記発光領域 117 側はドライエッチングによって粗面化されている。尚、上記構成の場合、上記電荷輸送

層 1 1 6 は、ホール輸送層である。

このような構成とすることによって、発光領域 1 1 7 と電荷輸送領域 1 1 6 との接触面積が向上し、陽極 1 0 5 から発光領域 1 1 7 に注入されるホールの注入効率が向上する。

- 5      尚、本実施の形態では、電荷輸送領域を粗面化した構成について説明したが、上記電荷輸送領域を多孔質化することによっても、粗面化した場合と同様の効果を達成することができるのは、勿論である。また、上記電荷輸送層 1 1 6 が発光特性を有する場合には、上記発光領域 1 1 7 は必要は必ずしも必要はなく、電荷輸送層 1 1 6
- 10    の陽極 1 0 5 側あるいは陰極 1 0 1 側の少なくとも一方を、多孔質化あるいは粗面化することにより、上記と同様に電極からの電荷の注入効率が向上する。

#### 産業上の利用可能性

- 15      以上に説明したように、本発明の構成によれば、本発明の課題を十分に達成することができる。

- 即ち、第 1 の発明群の発明によれば、ポリマーあるいは電荷輸送材を分散したポリマーに発光分子、あるいは発光分子及び電荷輸送材を浸透させることにより、ポリマー分散型の有機発光素子において、
- 20    高い発光効率を実現すると同時に容易にパターンニングができる有機発光素子を提供することができる。

- また、第 2 の発明群の発明群によれば、高分子系有機発光素子において、従来、有機層全体に拡散していた発光領域を特定領域に集約し、発光分子の存在するホールと電子の再結合領域を多孔質化あ
- 25    りいは粗面化し表面積を増大させることにより、高輝度発光を実現することができる。

## 請 求 の 範 囲

1. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、  
上記発光領域は、発光に寄与する物質と該物質を含有するための  
5 媒体とからなり、

上記発光に寄与する物質は、上記発光領域の上記陽極側から上記  
陰極側に向けて、略連続的に濃度分布をもつ構成であることを特徴  
とする発光素子。

10 2. 上記発光に寄与する物質は、上記発光領域の上記陽極側また  
は上記陰極側のうちいずれか一方側が他方側よりも高濃度となるよ  
うな濃度分布を示し、上記一方側から他方側へ連続的に濃度が減少  
している構成であることを特徴とする請求項1に記載の発光素子。

15 3. 上記発光領域は、更に、電荷輸送性物質を含むことを特徴と  
する請求項1に記載の発光素子。

4. 上記電荷輸送性物質は、上記発光領域の上記陽極側から上記  
陰極側に向けて、略連続的に濃度分布をもつ構成であることを特徴  
20 とする請求項3に記載の発光素子。

5. 陽極と陰極との間に電荷輸送領域を有する発光素子であっ  
て、

上記電荷輸送領域は、電荷輸送性物質と該電荷輸送性物質を含  
25 有するための媒体とからなり、

上記電荷輸送性物質は、上記電荷輸送領域の上記陰極側から陽極  
側に向けて、略連続的に濃度分布をもつ構成であることを特徴とす  
る発光素子。

6. 上記発光領域は、上記発光に寄与する物質が存在しない領域を有することを特徴とする請求項 1 に記載の発光素子。

5 7. 上記発光領域中の、上記発光に寄与する物質の最大濃度を示す部分は、上記陽極および上記陰極から離れていることを特徴とする請求項 1 に記載の発光素子。

8. 上記電荷輸送領域は、上記電荷輸送性物質が存在しない領域を有することを特徴とする請求項 5 に記載の発光素子。

10

9. 上記電荷輸送領域中の、上記電荷輸送物質の最大濃度を示す部分は、上記陽極および上記陰極から離れていることを特徴とする請求項 5 に記載の発光素子。

15 10. 請求項 1 に記載の発光素子を用いたことを特徴とする照明装置。

11. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、  
上記発光領域は、発光に寄与する物質と該物質を含有するための  
20 媒体とよりなり、

上記陰極面および上記陽極面に平行な方向において、上記発光に寄与する物質の濃度は、上記発光領域の略中央から周辺へ向けて略連続的に減少することを特徴とする発光素子。

25 12. 前記発光に寄与する物質を、上記陰極面および上記陽極面に平行な方向に、隣接して複数有する構成であり、該複数の発光に寄与する物質の発光色はそれぞれ異なることを特徴とする請求項 1 に記載の発光素子。

1 3 . 上記発光領域は、更に、電荷輸送性物質を含むことを特徴とする請求項 1 1 に記載の発光素子。

1 4 . 上記電荷輸送性物質の濃度は、上記陰極面および上記陽極  
5 面に平行な方向において、上記発光領域の略中央から周辺へ向けて減少することを特徴とする請求項 1 3 に記載の発光素子。

1 5 . 上記発光に寄与する物質は、上記発光領域の上記陰極側から上記陽極側に向けて、略連続的に濃度分布をもつ構成であること  
10 を特徴とする請求項 1 1 に記載の発光素子。

1 6 . 上記電荷輸送性物質は、上記発光領域の上記陰極側から上記陽極側に向けて、略連続的に濃度分布をもつ構成であることを特徴とする請求項 1 4 に記載の発光素子。

15

1 7 . 上記発光領域は、上記発光に寄与する物質が存在しない領域を有することを特徴とする請求項 1 1 に記載の発光素子。

1 8 . 上記発光に寄与する物質を含有するための媒体が、電荷輸  
20 送性能を有することを特徴とする請求項 1 1 に記載の発光素子。

1 9 . 上記発光に寄与する物質を含有するための媒体が、有機物からなることを特徴とする請求項 1 1 に記載の発光素子。

2 0 . 上記媒体がポリマーからなることを特徴とする請求項 1 1  
25 に記載の発光素子。

2 1 . 請求項 1 1 に記載の発光素子を用いたことを特徴とする表示装置。

22. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、

上記陽極あるいは陰極上に媒体を配置する配置工程と、

5 上記媒体中に発光に寄与する物質を含有させて発光領域を形成する含有工程と、

を有することを特徴とする発光素子の製造方法。

23. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法  
10 であって、

上記陽極あるいは陰極上に電荷輸送性物質を含有する媒体を配置する配置工程と、

上記媒体中に発光に寄与する物質を含有させて発光領域を形成する含有工程と、

15 を有することを特徴とする発光素子の製造方法。

24. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、

上記陽極あるいは陰極上に媒体を配置する配置工程と、

20 上記媒体中に発光に寄与する物質及び電荷輸送性物質を含有させる含有工程と、

を有することを特徴とする発光素子の製造方法。

25. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法  
25 であって、

上記陽極あるいは陰極上に電荷輸送性物質を含有する媒体を配置する配置工程と、

上記媒体中に発光に寄与する物質及び電荷輸送性物質を含有させる含有工程と、



を有することを特徴とする発光素子の製造方法。

26. 陽極と陰極との間に電荷輸送領域を有する発光素子の製造方法であって、

- 5      上記陽極あるいは陰極上に媒体を配置する配置工程と、  
        上記媒体中に電荷輸送性物質を含有させる含有工程と、  
        を有することを特徴とする発光素子の製造方法。

27. 上記含有工程において、上記発光に寄与する物質を上記媒  
10      体中に浸透させることによって含有させることを特徴とする請求項  
        23に記載の発光素子の製造方法。

28. 上記含有工程において、上記発光に寄与する物質および上  
        記電荷輸送性物質を媒体中に浸透させることによって含有させるこ  
15      とを特徴とする請求項24に記載の発光素子の製造方法。

29. 上記含有工程において、上記発光に寄与する物質を溶媒に  
        溶かして得られた溶液を、上記媒体に接触させることにより浸透さ  
        せることを特徴とする請求項23に記載の発光素子の製造方法。

20

30. 上記含有工程において、上記発光に寄与する物質および上  
        記電荷輸送性物質を溶媒に溶かして得られた溶液を、上記媒体に接  
        触させることにより浸透させることを特徴とする請求項24に記載  
        の発光素子の製造方法。

25

31. 上記含有工程において、上記媒体中に発光に寄与する物質  
        をインクジェット法により浸透させることを特徴とする請求項27  
        に記載の発光素子の製造方法。

3 2 . 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、  
上記発光領域は発光に寄与する物質を含み、  
上記陽極と上記陰極との間には、上記発光に寄与する物質を特定の領域に集約するための集約化手段を有することを特徴とする発光  
5 素子。

3 3 . 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、  
上記発光領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が多  
孔質化されており、  
10 上記発光領域の多孔質化された表面に発光に寄与する物質を有する構成であることを特徴とする発光素子。

3 4 . 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、  
上記発光領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が多  
15 孔質化されており、  
上記発光領域の多孔質化された表面近傍に発光に寄与する物質を有する構成であることを特徴とする発光素子。

3 5 . 上記発光領域の多孔質化された表面に電荷輸送性物質を有  
20 する構成であることを特徴とする請求項 3 3 に記載の発光素子。

3 6 . 上記発光領域の多孔質化された表面に、電荷輸送性物質からなる平坦化層を有する構成であることを特徴とする請求項 3 3 に  
記載の発光素子。

25

3 7 . 陽極と陰極との間に電荷輸送領域を有する発光素子であって、

上記電荷輸送領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が多孔質化された構成であることを特徴とする発光素子。

38. 上記電荷輸送領域は、ホール輸送領域であることを特徴とする請求項37に記載の発光素子。

5      39. 上記電荷輸送領域は、電子輸送領域であることを特徴とする請求項37に記載の発光素子。

40. 上記発光領域が有機物からなることを特徴とする請求項33に記載の発光素子。

10

41. 上記発光領域がポリマーからなることを特徴とする請求項33に記載の発光素子。

15      42. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、  
上記発光領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が粗面化されており、

上記発光領域の粗面化された表面に発光に寄与する物質を有する構成であることを特徴とする発光素子。

20      43. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、  
上記発光領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が粗面化されており、

上記発光領域の粗面化された表面近傍に発光に寄与する物質を有する構成であることを特徴とする発光素子。

25

44. 上記発光領域の粗面化された表面に、電荷輸送性物質からなる平坦化層を有することを特徴とする請求項42に記載の発光素子。

45. 陽極と陰極との間に電荷輸送領域を有する発光素子であって、

上記電荷輸送領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が粗面化された構成であることを特徴とする発光素子。

5

46. 上記電荷輸送領域は、ホール輸送領域であることを特徴とする請求項45に記載の発光素子。

47. 上記電荷輸送領域は、電子輸送領域であることを特徴とする請求項45に記載の発光素子。

10

48. 上記発光領域が有機物からなることを特徴とする請求項42に記載の発光素子。

49. 上記発光領域がポリマーからなることを特徴とする請求項42に記載の発光素子。

15

50. 請求項33に記載の発光素子を用いたことを特徴とする表示装置。

20

51. 請求項33に記載の発光素子を用いたことを特徴とする照明装置。

52. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、

25

上記陽極あるいは上記陰極上に媒体を配置する媒体配置工程と、  
上記媒体の少なくとも一部を多孔質化する多孔質化工程と、  
を有することを特徴とする発光素子の製造方法。

5 3 . 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、

上記陽極あるいは上記陰極上に媒体を配置する媒体配置工程と、  
上記媒体の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方を多孔質  
5 化する多孔質化工程と、

上記媒体の多孔質化された表面に、発光に寄与する物質を配置し、  
上記媒体と上記発光に寄与する物質とにより発光領域を形成する配  
置工程と、

を有することを特徴とする発光素子の製造方法。

10

5 4 . 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、

上記陽極あるいは上記陰極上に媒体を配置する媒体配置工程と、  
上記媒体の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方を多孔質  
15 化する多孔質化工程と、

上記媒体の多孔質化された表面近傍に、発光に寄与する物質を含有し、  
上記媒体と上記発光に寄与する物質とにより発光領域を形成する含有工程と、

上記発光領域の多孔質化された表面に電荷輸送性物質を配置する  
20 配置工程と、

を有することを特徴とする発光素子の製造方法。

5 5 . 上記発光領域の多孔質化された表面に、電荷輸送性物質を配置する配置工程を有することを特徴とする請求項 5 3 に記載の発  
25 光素子の製造方法。

5 6 . 上記発光領域上に、電荷輸送性物質からなる平坦化層を形成する平坦化層形成工程を有することを特徴とする請求項 5 3 に記載の発光素子の製造方法。

5 7 . 上記配置工程は、特定の溶媒に可溶な物質を含有する媒体を配置する工程であり、

上記多孔質化工程は、上記溶媒により上記物質を溶出することにより多孔質化を行う工程であることを特徴とする請求項 5 3 に記載の発光素子の製造方法。

5 8 . 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、

10 上記陽極あるいは上記陰極上に媒体を配置する媒体配置工程と、  
上記媒体の一部を粗面化する粗面化工程と、  
を有することを特徴とする発光素子の製造方法。

5 9 . 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法  
15 であって、

上記陽極あるいは上記陰極上に媒体を配置する媒体配置工程と、  
上記媒体の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方を粗面化する粗面化工程と、

上記媒体の粗表面に、発光に寄与する物質を配置し、上記媒体と  
20 上記発光に寄与する物質とにより発光領域を形成する配置工程と、  
を有することを特徴とする発光素子の製造方法。

6 0 . 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法  
であって、

25 上記陽極あるいは上記陰極上に媒体を配置する媒体配置工程と、  
上記媒体の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方を粗面化する粗面化工程と、

上記媒体の粗表面近傍に、発光に寄与する物質を含有させ、上記媒体と上記発光に寄与する物質とにより発光領域を形成する含有工

程と、

を有することを特徴とする発光素子の製造方法。

61. 上記発光領域上に、電荷輸送性物質からなる平坦化層を形成する平坦化層形成工程を有することを特徴とする請求項59に記載の発光素子の製造方法。

62. 上記粗面化工程は、ドライエッチングにより上記発光領域を粗面化する工程であることを特徴とする請求項59に記載の発光素子の製造方法。

15

20

25

図1

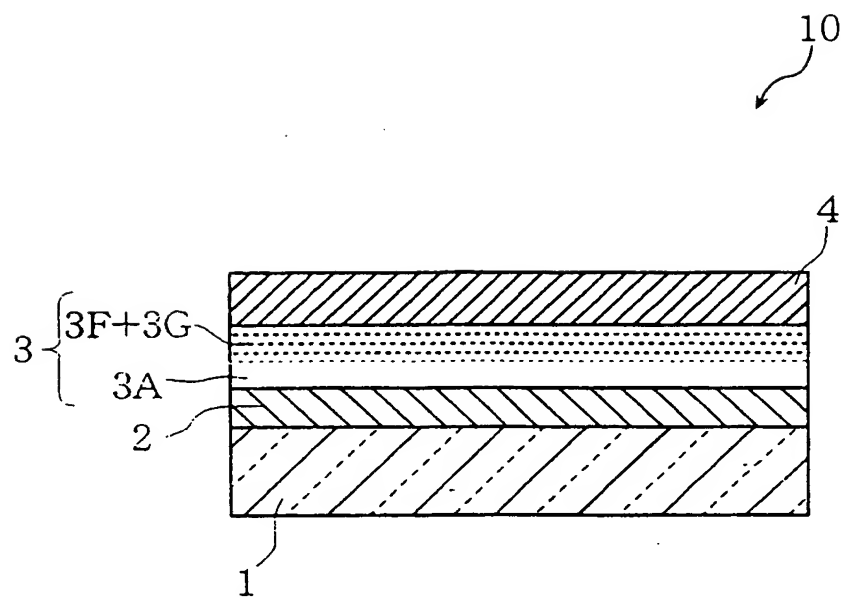




図2

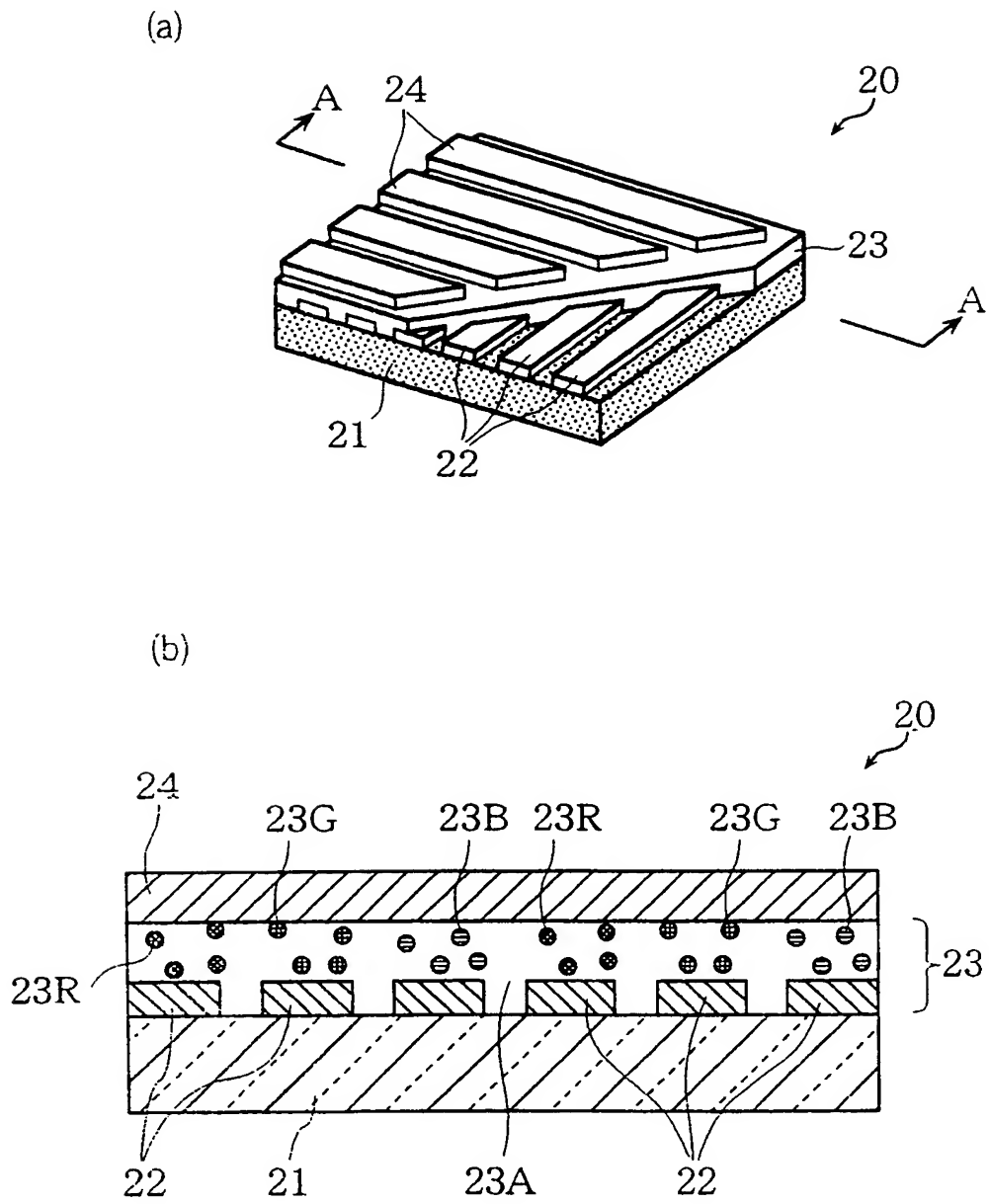


図3

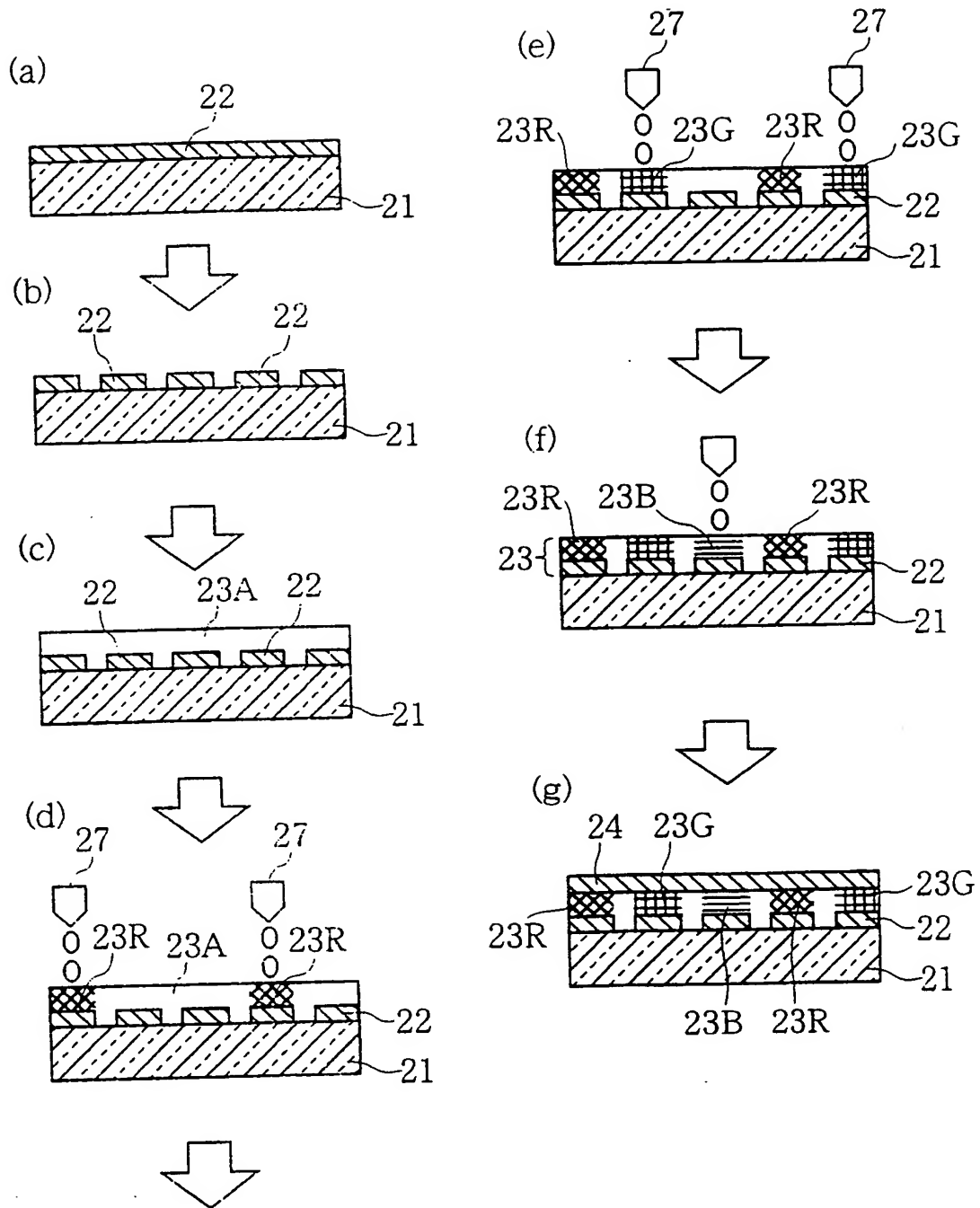


図4

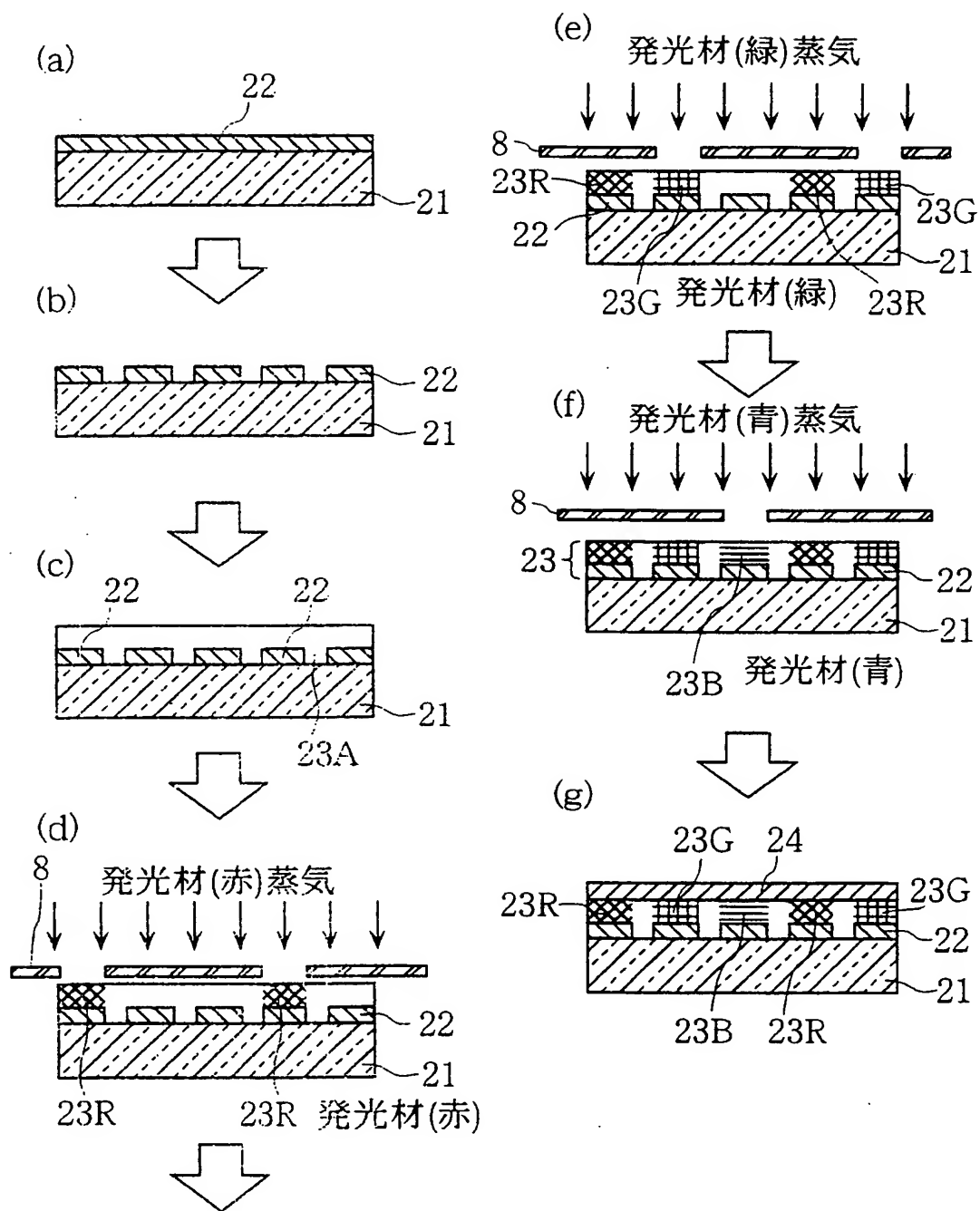


図5

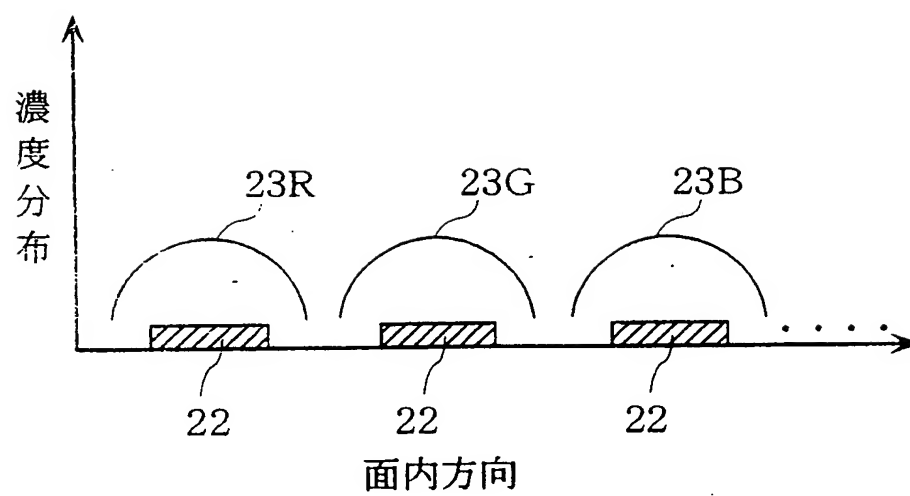


図6

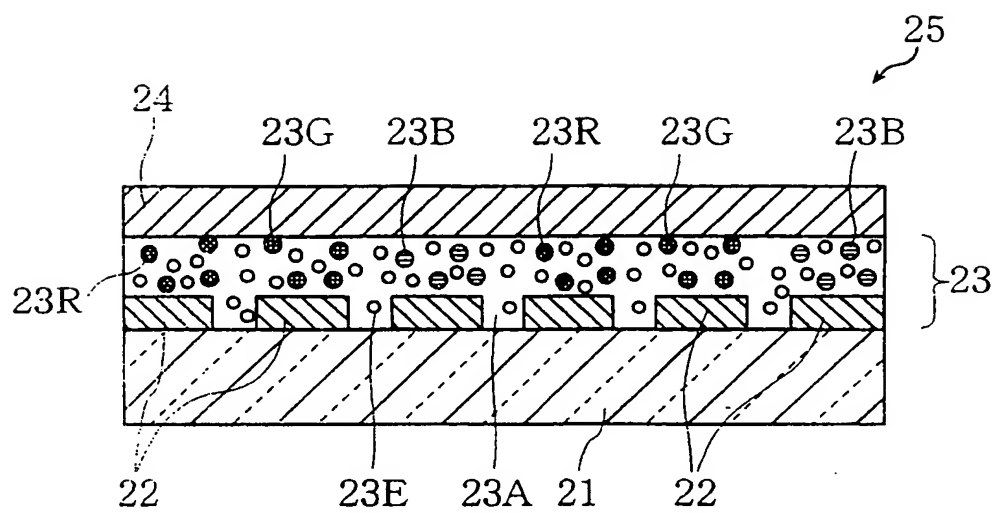


図7

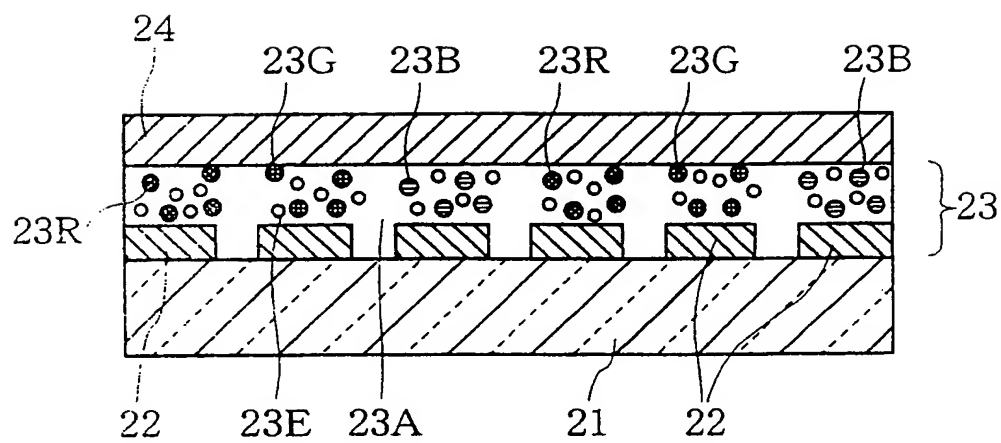


図8

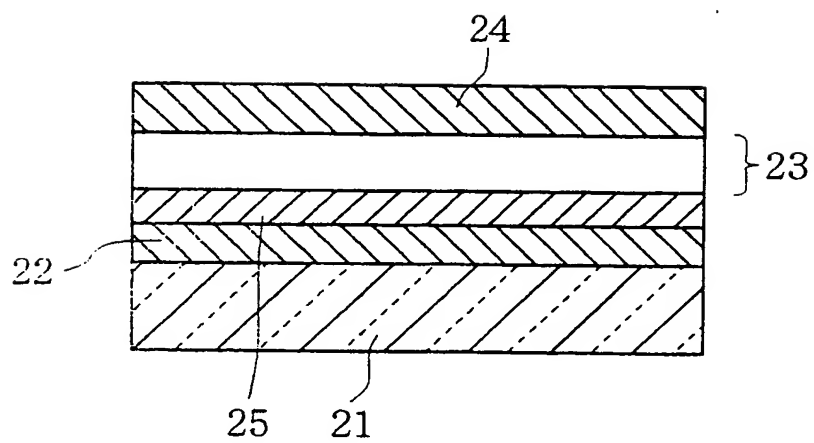


図9

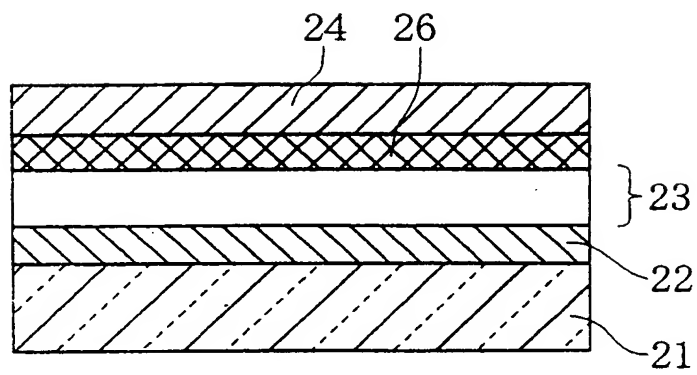




図10

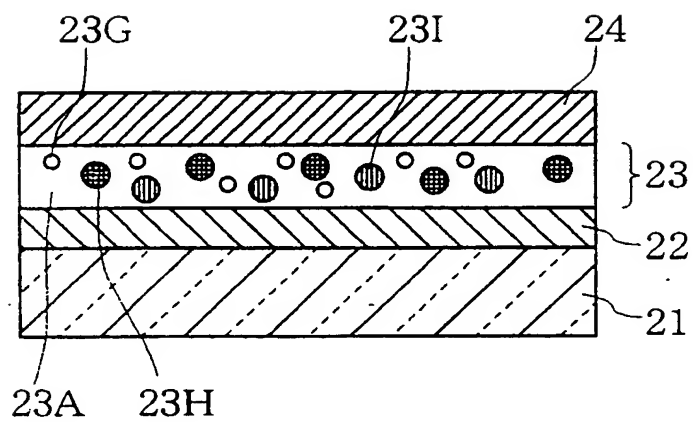


図11

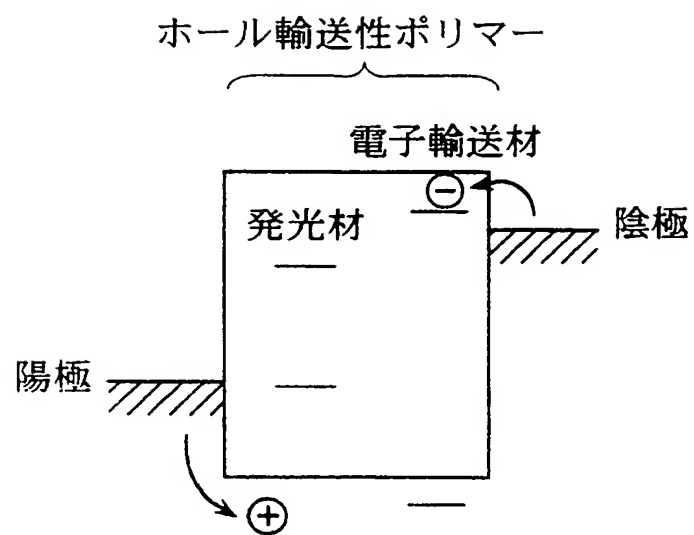


図12

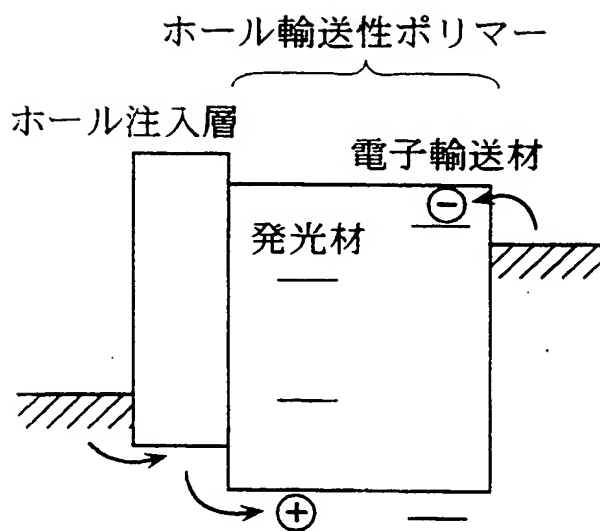


図13

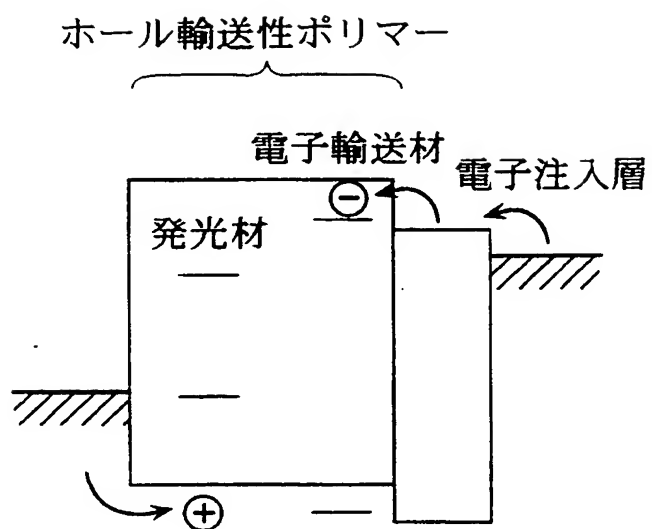


図14

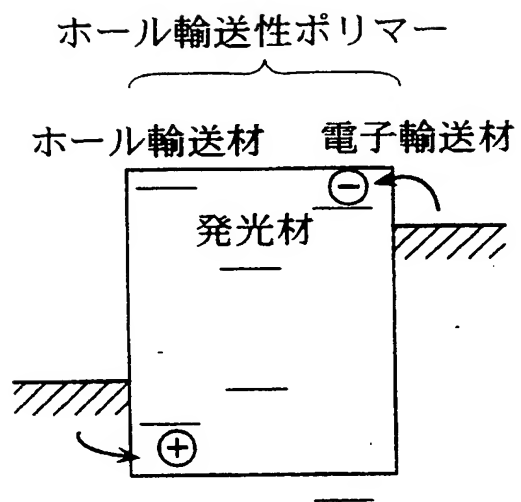


図15

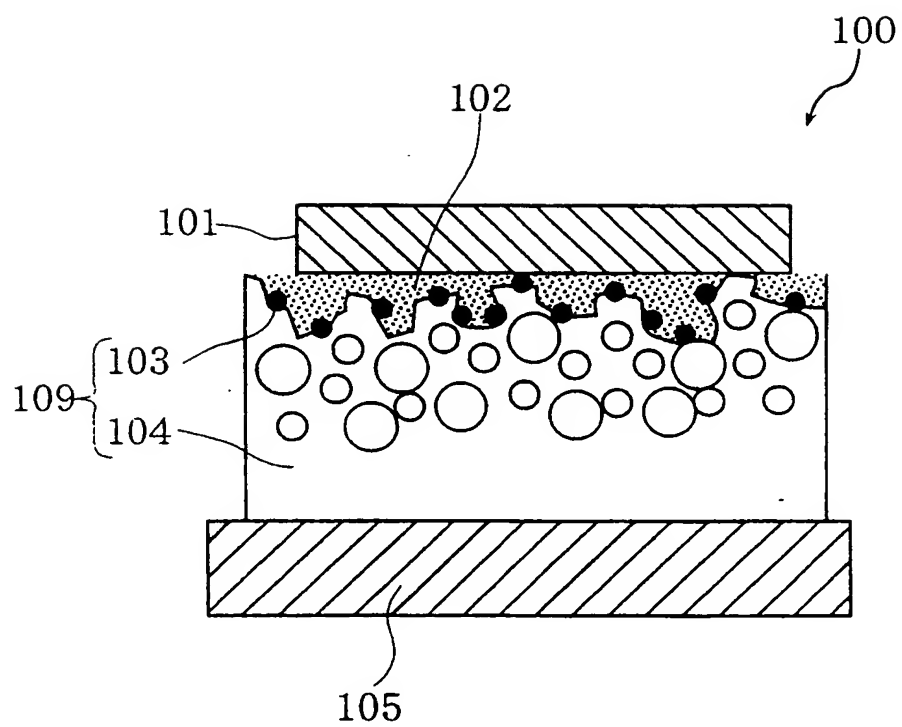


図16

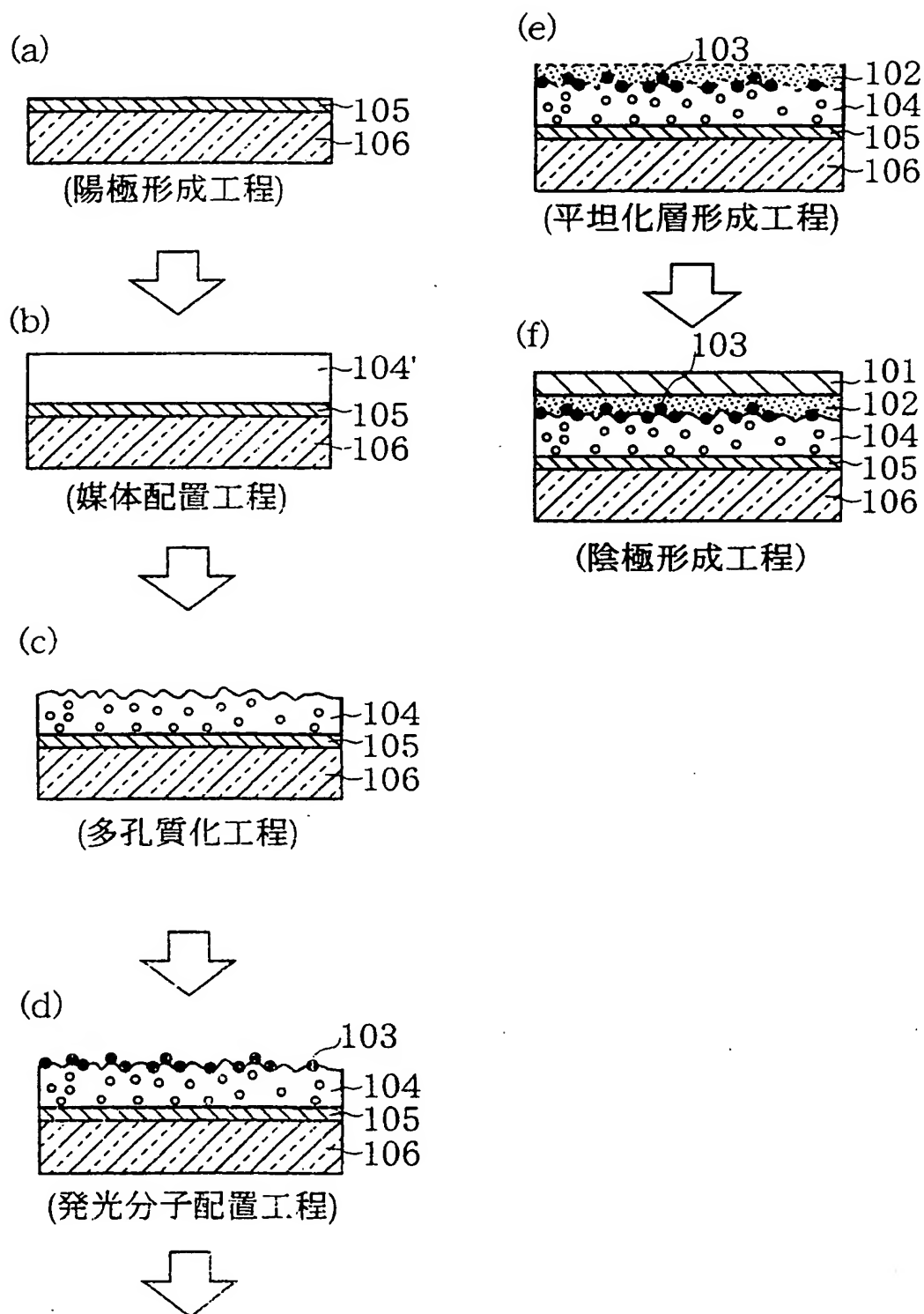


図17

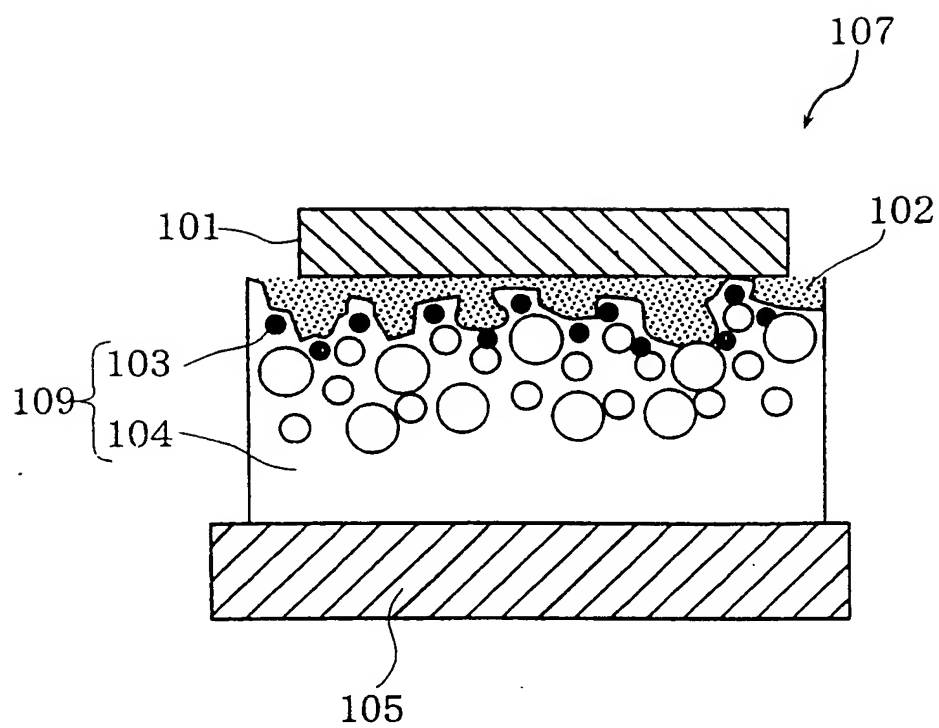




図18

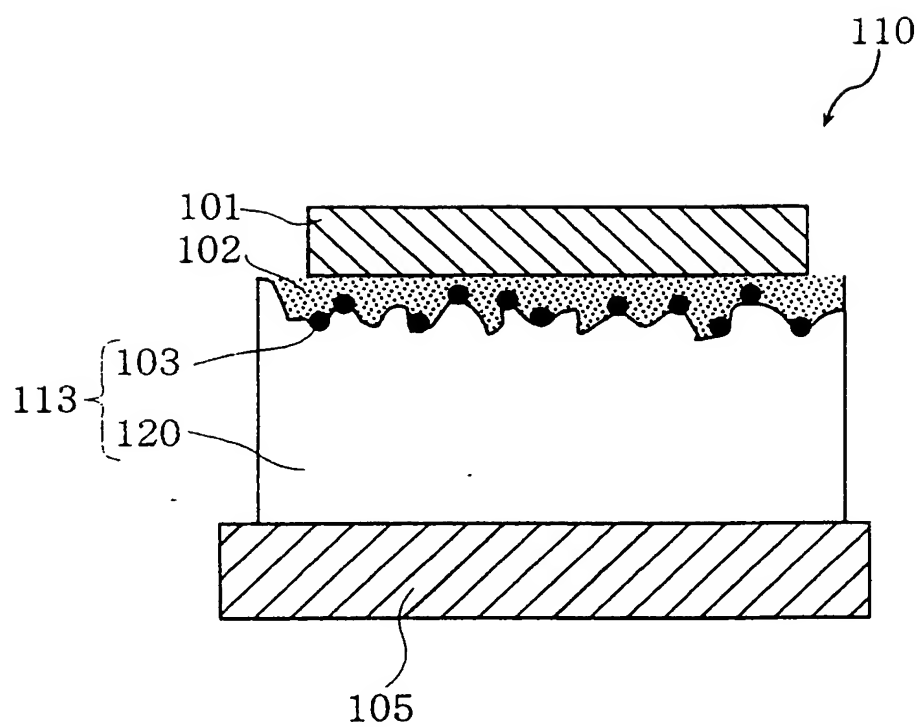


図19

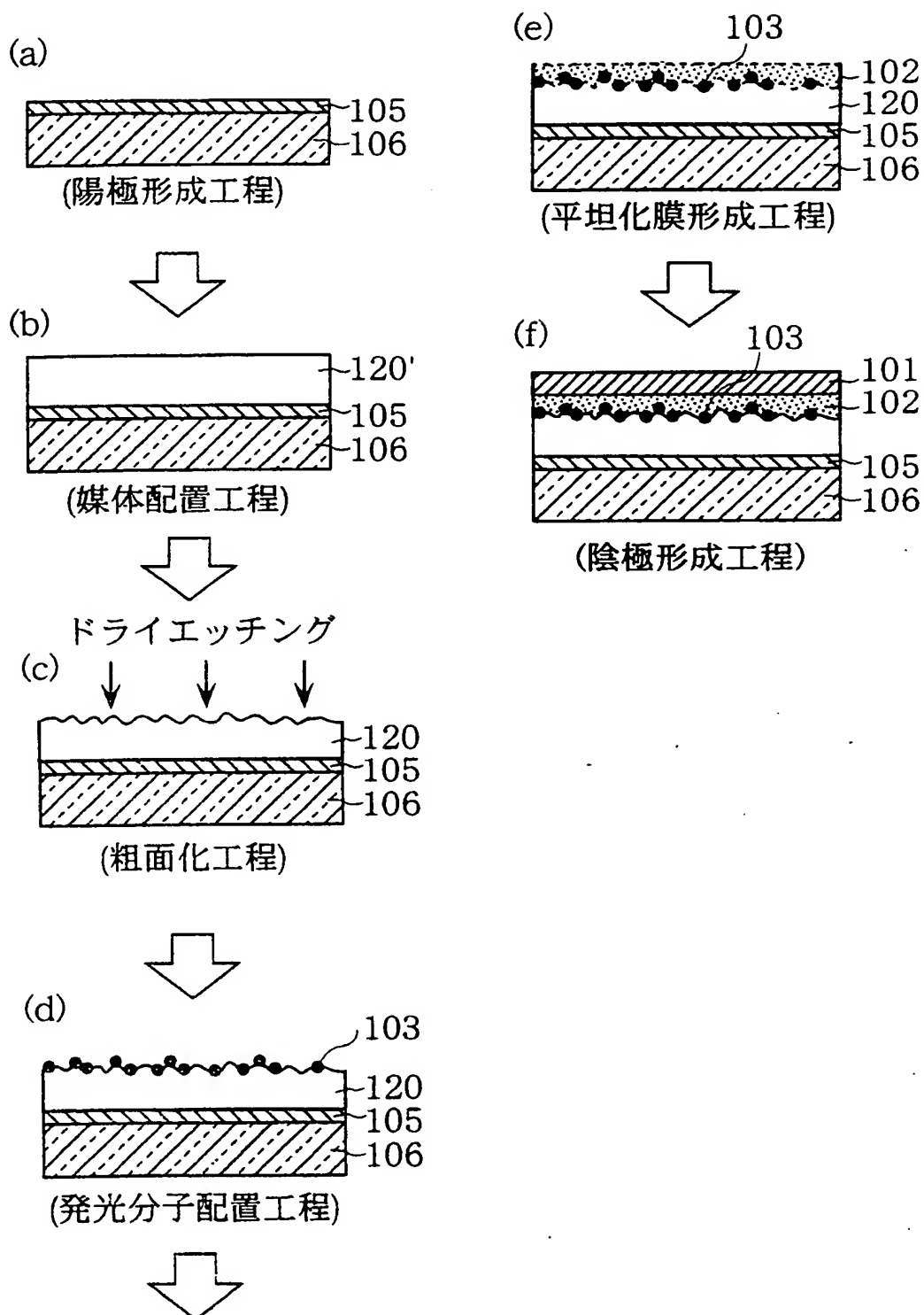
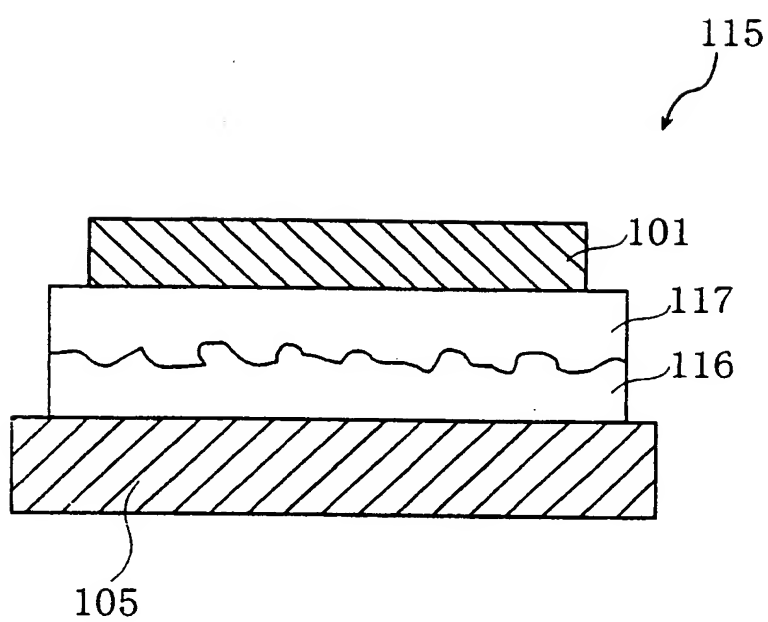


図20



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/06971

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> H05B33/14, H05B33/10, H01L33/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> H05B33/14, H05B33/10, H01L33/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1940-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	JP, 4-357694, A (Denki Kagaku Kogyo K. K.), 10 December, 1992 (10.12.92), Full text (Family: none)	1-10, 22-32 11-21
Y A	JP, 11-74083, A (Seiko Epson Corporation), 16 March, 1999 (16.03.99), Full text & WO, 99/12396, A	1-10, 22-32 11-21
Y	JP, 7-235378, A (Casio Computer Co, Ltd.), 05 September, 1995 (05.09.95), Full text & US, 5895692, A	22-32, 33-62
E, Y	US, 6066357, A (Eastman Kodak Company), 23 May, 2000 (23.05.00), Full text & JP, 2000-188180, A	1-31
Y	JP, 8-279628, A (Casio Computer Co, Ltd.), 22 October, 1996 (22.10.96),	33-62

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:  
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
"E" earlier document but published on or after the international filing date  
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art  
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
26 December, 2000 (26.12.00)

Date of mailing of the international search report  
16 January, 2001 (16.01.01)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/06971

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
	Full text (Family: none)	
A	JP, 3-114197, A (NEC Corporation), 15 May, 1991 (15.05.91) (Family: none)	1-32
A	JP, 11-162640, A (Matsushita Electric Ind. Co., Ltd.), 18 June, 1999 (18.06.99) (Family: none)	33-62
A	JP, 2000-26851, A (Mitsubishi Electric Corporation), 25 January, 2000 (25.01.00) (Family: none)	33-62

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. H05B33/14, H05B33/10, H01L33/00

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. H05B33/14, H05B33/10, H01L33/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1940-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2000年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2000年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y A	J P, 4-357694, A (電気化学工業株式会社) 10. 12月. 1992 (10.12.92) 全文 (ファミリーなし)	1-10, 22-32 11-21
Y A	J P, 11-74083, A (セイコーエプソン株式会社) 16. 3月. 1999 (16.03.99) 全文 & WO, 99/12396, A	1-10, 22-32 11-21
Y	J P, 7-235378, A (カシオ計算機株式会社) 5. 9月. 1995 (05.09.95) 全文 & US, 5895692, A	22-32, 33-62

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

26. 12. 00

国際調査報告の発送日

16.01.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)  
 郵便番号100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

今関 雅子



3X

9529

電話番号 03-3581-1101 内線 3371

C (続き) . 関連すると認められる文献 .		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
E, Y	US, 6 0 6 6 3 5 7, A (Eastman Kodak Company) 23. 5月. 2000 (23.05.00) 全文 & J P, 2000-188180, A	1-31
Y	J P, 8-279628, A (カシオ計算機株式会社) 22. 10月. 1996 (22.10.96) 全文 (ファミリーなし)	33-62
A	J P, 3-114197, A (日本電気株式会社) 15. 5月. 1991 (15.05.91) (ファミリーなし)	1-32
A	J P, 11-162640, A (松下電器産業株式会社) 18. 6月. 1999 (18.06.99) (ファミリーなし)	33-62
A	J P, 2000-26851, A (三菱電機株式会社) 25. 1月. 2000 (25.01.00) (ファミリーなし)	33-62